

SÉRIE : B

N° D'ORDRE : 51

N° DE SÉRIE : 43

THESE

présentée devant

L'UNIVERSITÉ DE RENNES

U. E. R. Structure et Propriétés de la Matière

pour obtenir

Le titre de Docteur-Ingénieur

Spécialité : Cristallographie

par

Claude ECOLIVET

Département de Physique Cristalline et Chimie Structurale

Étude expérimentale de la diffusion Brillouin dans des solides
et des liquides

Soutenue le 16 Janvier 1975 devant la Commission d'Examen

MM. J. MEINNEL	Professeur à l'Université de Rennes	Président
M.A. NUSIMOVICI	Professeur à l'Université de Rennes	
J.L. BIRMAN	Professeur à l'Université de la ville de New-York. Docteur Honoris Causa de l'Université de Rennes	Examineurs
P.F. GOBIN	Professeur à l'I.N.S.A. de Lyon	
R. GRANGER	Professeur à l'I.N.S.A. de Rennes	



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41553611_0010

SÉRIE : B
N° D'ORDRE : 51
N° DE SÉRIE : 43

THESE

présentée devant

L'UNIVERSITÉ DE RENNES
U. E. R. Structure et Propriétés de la Matière

pour obtenir

Le titre de Docteur-Ingénieur
Spécialité : Cristallographie

par

Claude ECOLIVET

Département de Physique Cristalline et Chimie Structurale

Étude expérimentale de la diffusion Brillouin dans des solides
et des liquides

Soutenue le 16 Janvier 1975 devant la Commission d'Examen

MM. J. MEINNEL	Professeur à l'Université de Rennes	Président
M.A. NUSIMOVICI	Professeur à l'Université de Rennes	
J.L. BIRMAN	Professeur à l'Université de la ville de New-York. Docteur Honoris Causa de l'Université de Rennes	Examineurs
P.F. GOBIN	Professeur à l'I.N.S.A. de Lyon	
R. GRANGER	Professeur à l'I.N.S.A. de Rennes	



UNIVERSITE DE RENNES

U.E.R. SCIENCES ET PHILOSOPHIE

Doyens Honoraires

M. MILON Y.
M. TREHIN R.
M. SCHMITT M.
M. LE MOAL H.
M. MARTIN Y.
M. BOCLE J.

Professeurs Honoraires

M. FREYMANN R.
M. HAGENE P.
M. ROHMER R.
M. TREHIN R.
M. SALMON - LEGAGNEUR F.
M. des ABBAYES H.
M. MILON Y.

Maîtres de Conférences Honoraires

M. GRILLET L.
M. LECRECQ A.

Mathématiques

Professeurs

M. GUERINDON Jean
M. METIVIER Michel
M. GIORGIUTTI Italo
M. TOUGERON Jean-Claude
M. MIGNOT Alain
M. HOUDEBINE Jean
M. KEANE Michaël
M. BOULAYE Guy

Maîtres de Conférences & Chargés de Cours

M. BERTHELOT Pierre
M. BREEN Lawrence
M. CAMUS Jacques
M. CONZE Pierre
M. FERRAND Daniel
M. GUIVARC'H Yves
M. LE GOUPIL Jean
M. LERMAN Israël
M. NEDELEC Jean-Claude
M. TRILLING Laurent
M. VERJUS Jean-Pierre

Physique

M. VACHER Michel
M. VIGNERON Léopold
M. LE BOT Jean
Mme ROBIN née SALOMOND
M. ROBIN Stéphane
M. LE MONTAGNER Serge
M. MEVEL Jean-Yves
M. MEINNEL Jean
M. REGENSTREIF Edouard
M. BRUN Pierre
M. LE ROUX Emile
M. DUBOST Gérard
M. ARQUES Pierre-Yves
M. HAEUSLER Claude
M. NUSIMOVICI Michel

M. GUIDINI J.
M. DECAMPS E.A.

Professeurs

Maîtres de Conférences & Chargés de Cours

Chimie

M. VENE Jean
M. LE MOAL Henri
M. LEVAS E.
M. PELTIER Daniel
M. PRIGENT J.
M. FOUCAUD André
M. LANG Jean
M. CARRIE R.
M. GUERILLOT Claude-Roger
M. KERFANTO Michel (E.N.S.C.R.)
M. DABARD René
M. GRANDJEAN Daniel
M. LUCAS Jacques
M. MARTIN Guy

M. TALLEC André

Chimie Biologique

M. JOUAN Pierre
M. DUVAL Jacques

Géologie

M. COGNE Jean
Mlle DURAND Suzanne
M. BOILLLOT Gilbert

M. HAMEURT Jean-Marie
M. LARDEUX Hubert

Zoologie

M. RICHARD Gaston
M. MAILLET Pierre
M. RAZET Pierre
M. FOLLIOU Roger
M. ALLEGRET Paul
M. MANIEY Jacques
M. JOLY Jean-Marie
M. LEFEUVRE J.C.

M. CALLEC Jean-Jacques

Botanique

M. VILLERET Serge
M. CLAUSTRES Georges
Mlle GOAS Gabrielle
Mlle GOAS Marie
Mme LEMOINE Cécile

M. TOUFFET Jean

Philosophie

M. ORTIGUES Edmond

M. JACQUES Francis
M. BEYSSADE Jean-Marie

A Françoise et Stéphane

A mes parents

A mes amis

Ce travail a été effectué dans le Laboratoire de Monsieur Le Professeur NUSIMOVICI que je tiens à remercier pour son accueil et les conseils qu'il m'a prodigués.

Monsieur le Professeur MEINNEL a bien voulu me faire l'honneur de présider ma Commission d'Examen ; qu'il en soit ici remercié.

Je tiens à remercier spécialement Monsieur le Professeur BIRMAN qui a bien voulu s'intéresser à ce travail et siéger dans la Commission d'Examen, lors de son passage à Rennes.

Je remercie vivement Monsieur le Professeur GOBIN pour avoir accepté de venir siéger à la Commission d'Examen.

Je tiens également à assurer de ma reconnaissance Monsieur le Professeur GRANGER pour l'aide matérielle et les conseils qu'il m'a prodigués ainsi que pour sa présence au sein de cette Commission.

Enfin, je ne saurais oublier tous les collègues qui ont accepté soit de me prêter des appareils ou des échantillons, ou soit de me donner quelques bons conseils ; qu'ils soient tous ici remerciés, ainsi que Madame LEMOINE qui s'est acquittée avec beaucoup de gentillesse de la dactylographie de ce mémoire.

S O M M A I R E

	Pages
I - INTRODUCTION.....	1
II - INTERET DE LA DIFFUSION BRILLOUIN.....	2
II.1 - Ondes élastiques dans les solides.....	2
II.1.1 - Vibrations d'un réseau cristallin - théorie microscopique.....	2
II.1.2 - Théorie macroscopique.....	4
II.1.3 - Liaison entre ces deux théories : méthode des grandes ondes.....	7
II.2 - Ondes élastiques dans les fluides.....	10
II.3 - Diffusion de la lumière par un milieu matériel.....	11
II.3.1 - Les trois types de diffusion.....	11
II.3.2 - Diffusion inélastique de la lumière par une onde ultrasonore.....	12
II.3.2.1 - Analogie avec la diffusion des rayons X.....	14
II.3.2.2 - Collision d'un photon et d'un phonon	
II.3.2.3 - Intensité de la lumière diffusée....	16
II.3.3 - Renseignements théoriquement déductibles d'un spectre de diffusion Rayleigh-Brillouin.....	23
II.3.4 - Différences avec l'effet Raman.....	25
III - TECHNIQUES EXPERIMENTALES.....	26
III.1 - Conditions requises pour l'observation de la diffusion Brillouin.....	26
III.2 - Appareillage utilisé.....	26
III.2.1 - Disposition générale.....	26
III.2.2 - L'interféromètre de Fabry-Pérot.....	29
III.2.2.1 - Principe de fonctionnement.....	29

III.2.2.2 - Paramètres définissant le fonctionnement et les qualités d'un F.P.P. idéal.....	30
III.2.2.3 - Influence des défauts dont peut souffrir un F.P.P. réel.....	33
III.2.2.4 - Système explorateur.....	35
III.2.2.5 - Interféromètre choisi.....	38
III.2.3 - Système optique utilisé.....	40
III.2.3.1 - Source lumineuse.....	40
III.2.3.2 - Optique d'entrée.....	41
III.2.3.3 - Optique de sortie et étendue du montage.....	41
III.2.3.4 - Etendue du spectromètre.....	43
III.2.4 - Systèmes de détection utilisés.....	44
III.2.4.1 - Le photomultiplicateur.....	44
III.2.4.2 - Cas des grosses intensités - détection continue.....	44
III.2.4.3 - Cas des faibles intensités.....	45
III.2.4.4 - Enregistrement à l'aide d'un analyseur multiéchelle.....	46
III.3 - Correction des non linéarités du défilement des fréquences	51
III.3.1 - Correction à la mesure de l'écart en fréquence entre deux raies.....	51
III.3.1.1 - Détermination directe des paramètres α et β	52
III.3.1.2 - Correction par minimisation.....	55
III.4 - Incertitudes d'origine expérimentale.....	56
IV - RESULTATS.....	59
IV.1 - Fonction d'appareil.....	59
IV.2 - Mesures effectuées sur des liquides.....	59
IV.2.1 - Diffusion par l'acétone.....	60
IV.2.1.1 - Conditions expérimentales.....	60
IV.2.1.2 - Résultats.....	60
IV.2.2 - Diffusion par l'eau.....	63
IV.2.2.1 - Conditions expérimentales.....	63
IV.2.2.2 - Résultats.....	63
IV.2.3 - Diffusion par le benzène.....	67
IV.2.3.1 - Conditions expérimentales.....	67
IV.2.3.2 - Résultats.....	67
IV.2.4 - Diffusion par le tétrachlorure de carbone.....	68
IV.2.4.1 - Conditions expérimentales.....	68
IV.2.4.2 - Résultats.....	68
IV.2.5 - Diffusion par le cyclohexane.....	71
IV.2.5.1 - Conditions expérimentales.....	71
IV.2.5.2 - Résultats.....	71

IV.2.6 - Résultats et conclusions de ces mesures sur les liquides.....	73
IV.3 - Etude de la diffusion par les solides.....	74
IV.3.1 - Diffusion par le chlorure de Sodium (NaCl)....	75
IV.3.1.1 - Conditions expérimentales.....	75
IV.3.1.2 - Résultats.....	76
IV.3.2 - Diffusion par le quartz.....	78
IV.3.2.1 - Conditions expérimentales.....	78
IV.3.2.2 - Résultats.....	79
IV.3.3 - Diffusion par le sulfure de zinc.....	81
IV.3.3.1 - Conditions expérimentales.....	81
IV.3.3.2 - Résultats.....	81
IV.3.4 - Diffusion par un verre de paratellurite.....	84
IV.3.4.1 - Conditions expérimentales.....	84
IV.3.4.2 - Résultats.....	84
IV.3.5 - Récapitulatif des résultats obtenus avec les solides.....	86
V - CONCLUSION.....	88

I - INTRODUCTION.

On appelle diffusion Brillouin, la diffusion de la lumière dans une onde élastique se propageant dans un milieu quelconque : gaz, liquide, solide.

Ce phénomène a été prévu en 1920 par L. BRILLOUIN⁽¹⁾ et n'a été confirmé expérimentalement qu'en 1930 par GROSS⁽²⁾. Cette fructueuse technique d'étude des liquides, des gaz et des cristaux, ne connaît un développement important que depuis quelques années seulement grâce à l'avènement des lasers et à cause des progrès de la spectroscopie interférentielle.

Cette diffusion provient de l'interaction de la lumière avec les ondes thermoélastiques qui sillonnent le cristal ; cette interaction est en quelque sorte un effet Döppler où l'onde élastique réfléchit l'onde lumineuse, mais en changeant la fréquence. Le décalage en fréquence est très inférieur à celui créé par l'effet Raman ($\sim 100 \text{ cm}^{-1}$) et donc ces raies sont très proches de la raie diffusée sans changement de fréquence.

La mise en évidence de telles raies nécessite donc un appareillage possédant un pouvoir de résolution élevé, c'est le montage et le fonctionnement de cet appareillage qui constituent l'objet de ce travail.

II - INTERET DE LA DIFFUSION BRILLOUIN.

II.1 - Ondes élastiques dans les solides.

II.1.1 - Vibrations d'un réseau cristallin - théorie microscopique.

Un réseau cristallin est composé de n mailles identiques peuplées chacune de N atomes.

Soit le $s^{\text{ième}}$ atome de masse M_s appartenant à la $\ell^{\text{ième}}$ maille repérée par le vecteur $\vec{\ell}$, alors le déplacement de cet atome, à l'instant t , sera noté $\vec{U}_{s,\ell}$, il satisfait à l'équation dynamique :

$$M_s \ddot{\vec{U}}_{s,\ell} = - \sum_{s',\ell'} G_{s\ell,s'\ell'} \vec{U}_{s',\ell'} \quad (1)$$

où $G_{s\ell,s'\ell'}$ est le terme général du tenseur représentant les actions des atomes voisins de l'atome (s,ℓ) sur cet atome, ce terme peut aussi s'écrire : $G_{ss'}(\vec{h})$ où $\vec{h} = \vec{\ell}' - \vec{\ell}$.

Le théorème de Bloch permet de relier le mouvement de l'atome s de la maille $\vec{\ell}$ au mouvement de l'atome s de la maille choisie comme origine.

$$\vec{U}_{s,\ell} = e^{i\vec{q} \cdot \vec{\ell}} \vec{U}_{s,0} = e^{i\vec{q} \cdot \vec{\ell}} \vec{U}_{s,\vec{q}} \quad (2)$$

Pour chaque solution de l'équation dynamique, il existe une valeur de $\vec{q}$ telle que l'équation ci-dessus soit vérifiée.

En tenant compte de l'équation (2), on peut écrire l'équation dynamique sous la forme suivante :

$$M_s \ddot{U}_{s,\vec{q}} = - \sum_{s'} G_{ss'}(\vec{q}) \vec{U}_{s',\vec{q}} \quad (3)$$

où $G_{ss'}(\vec{q})$ est la transformée de Fourier de $G_{ss'}(\vec{h})$.

Il est commode alors d'introduire le formalisme de la matrice dynamique⁽³⁾.

Posons :

$$D_{ss'}^{jj'}(\vec{q}) = \frac{1}{\sqrt{M_s M_{s'}}} G_{ss'}^{jj'}(\vec{q}) \quad (4)$$

où j représente une projection dans la direction x_j , ici le couple jj' représente une notation tensorielle.

$$\text{On pose également : } \vec{W}_{s',\vec{q}} = \sqrt{M_{s'}} \vec{U}_{s',\vec{q}} \quad (5)$$

Si on considère les déplacements sous forme d'ondes planes monochromatiques de pulsation ω , alors l'équation dynamique (3) s'écrit :

$$\sum_{s'} \{ D_{ss'}^{jj'}(\vec{q}) - \omega_{\vec{q}}^2 \delta_{ss'} \delta_{jj'} \} W_{s',\vec{q}}^{jj'} = 0 \quad (6)$$

L'équation (6) n'a de solutions que si l'équation séculaire de son déterminant peut s'écrire sous la forme :

$$\left| D_{ss'}^{jj'}(\vec{q}) - \omega_{\vec{q}}^2 \delta_{ss'} \delta_{jj'} \right| = 0 \quad (7)$$

où $\delta_{ss'}$ est le symbole de Kronecker.

Le déterminant ci-dessus est d'ordre $3N$ et donc beaucoup plus maniable que l'équation (1) qui est relative à $3Nn$ degrés de liberté.

Les $3N$ relations dérivant de l'équation (7) sont de la forme $\omega_{\vec{q}}^2 = f_i(\vec{q})$ où i varie de 1 à $3N$; ces solutions sont appelées relations de dispersion. Trois de ces solutions s'annulent pour $\vec{q} = 0$, définissant ainsi ce qu'on nomme les trois branches acoustiques ; les $(3N - 3)$ autres fonctions déterminent les branches optiques. La figure 1 représente ces différentes branches, dans un cas où $N = 2$, à l'intérieur de la 1^{ère} zone de Brillouin dans deux directions quelconques.

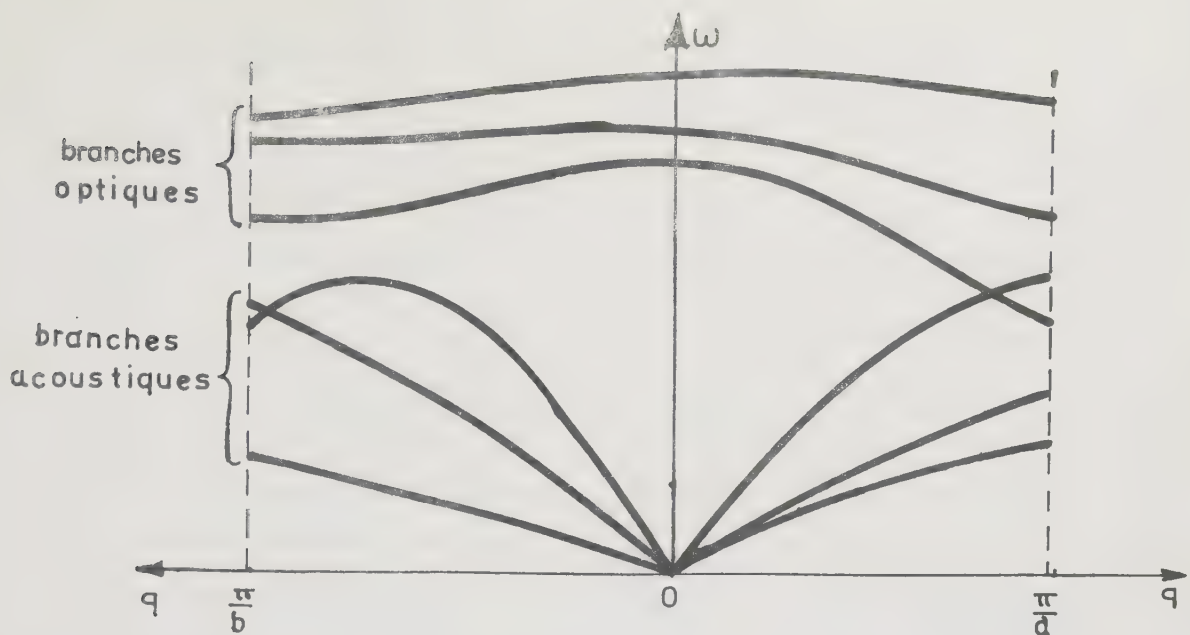


Figure 1 | Courbes de dispersion

a, b : paramètres du réseau réel.

Les 3 branches acoustiques correspondent aux trois degrés de liberté des modes de vibration ; ce sont ces trois modes que nous étudierons dans l'approximation de l'élasticité linéaire ; cette approximation correspond sur les courbes de dispersion à la région voisine du centre de la zone de Brillouin, où $\omega_{\vec{q}} = v_{\vec{q}} |\vec{q}|$; $v_{\vec{q}}$ étant la vitesse du son dans la direction $\vec{q}$.

II.1.2 - Théorie macroscopique.

Considérons le cristal comme un milieu continu de densité ρ_0 et appelons $\vec{U}$ le vecteur déplacement d'un petit volume élémentaire du cristal ; l'équation dynamique s'écrit alors :

$$\rho_0 \ddot{\vec{U}} = \nabla \cdot \vec{\sigma} \quad (8)$$

$\vec{\nabla}$ est l'opérateur de dérivation partielle et $\vec{\sigma}$ est le tenseur des contraintes dont le terme général σ_{ik} est défini comme la force exercée sur la face d'un cube de volume unité pris arbitrairement à l'intérieur du solide ; cette force dirigée suivant x_i étant exercée sur la surface perpendiculaire à la direction x_k . Ce tenseur d'ordre deux est symétrique par rapport à l'échange des indices.

Lorsque la loi de Hooke s'applique, on a :

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl} U_{kl} \quad (9)$$

où U_{kl} est l'élément général du tenseur des déformations défini comme suit :

$$U_{kl} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial U_k}{\partial x_l} + \frac{\partial U_l}{\partial x_k} \right) \text{ (sans sommation sur } k \text{ et } l) \quad (10)$$

U_l étant une composante du vecteur déplacement $\vec{U}$ et x_l l'abscisse du point où on effectue la dérivée dans la direction l .

Le tenseur des déformations étant lui aussi symétrique par rapport à l'échange des indices, le tenseur des constantes élastiques de terme général C_{ijkl} sera donc symétrique par rapport à l'échange deux à deux de tous ses indices.

En tenant compte de (9), (10) et des propriétés des différents tenseurs, il vient :

$$\rho_0 \ddot{U}_i = C_{ijkl} \frac{\partial^2 U_l}{\partial x_j \partial x_k} \quad (11)$$

Et si comme au paragraphe précédent, on considère des ondes monochromatiques planes :

$$U_i = U_{0i} e^{i(\vec{q} \cdot \vec{r} - \omega t)} \quad (12)$$

alors (11) devient :

$$(\rho_0 \omega^2 \delta_{il} - C_{ijkl} q_j q_k) U_l = 0 \quad (13)$$

Cette équation semblable à l'équation (6) n'a de solutions non triviales que si son déterminant s'annule.

$$|\rho_0 \omega^2 \delta_{il} - C_{ijkl} q_j q_k| = 0 \quad (14)$$

* On utilisera, dans ce paragraphe, sauf mention contraire, la convention de l'indice muet, de sommation sur les indices répétés.-

On peut simplifier l'équation (14) en tenant compte des symétries du cristal car certains termes du tenseur des constantes élastiques s'annulent tandis-que d'autres prennent des valeurs communes, le nombre de termes restant^{est} une fonction décroissante du nombre d'éléments de symétrie du cristal.

La notation du terme général du tenseur des constantes élastiques peut être allégée en utilisant la notation de Voigt ($x x = 1$, $y y = 2$, ..., $x y = 6$), ce qui permet de représenter le tenseur par une matrice 6×6 .

L'équation (14) n'est relativement commode à manipuler que pour des directions de propagation de haute symétrie ; on aboutit alors à une relation entre la vitesse du son $v_{\vec{q}}$ et les constantes élastiques dont une forme générale est :

$$v_{\vec{q}} = \sqrt{\frac{\alpha_{\lambda\mu} C_{\lambda\mu} \pm \sqrt{\alpha_{\lambda'\mu'}^2 C_{\lambda'\mu'}^2}}{\rho_0}} \quad (15)$$

où les coefficients α peuvent être négatifs ou positifs.

Une série d'expériences ou une expérience donnant des valeurs de la vitesse du son dans un solide permettra l'accès aux constantes élastiques avec une plus ou moins bonne précision, le cas le plus favorable provenant de l'existence d'un seul coefficient $\alpha_{\lambda\mu}$ correspondant à la constante $C_{\lambda\mu}$ cherchée.

A défaut d'un tel état, on recherchera des situations n'invoquant que peu de coefficients $\alpha_{\lambda\mu}$ et avec une valeur maximum de ce coefficient pour la constante cherchée.

D'autre part, on a intérêt également à choisir des ondes purement transverses ou longitudinales, ceci pour ne garder qu'une seule somme dans l'équation (15).

Ce mode opératoire est commun à toutes les mesures ultrasonores.

Il est bon de remarquer que les constantes élastiques mesurées peuvent provenir de différents régimes, les deux régimes les plus simples étant l'adiabatique et l'isotherme.

Le choix de l'un de ces deux régimes dépend des valeurs relatives de la période de l'onde ultrasonore et du temps τ_{th} nécessaire pour que

la conduction thermique égalise les températures entre les parties comprimée et détendue de l'onde élastique.

On montre que⁽⁴⁾ :

$$\tau_{th} \approx \lambda^2 \frac{C_p}{\Lambda} \quad (16)$$

où λ est la longueur d'onde élastique, C_p la chaleur spécifique et Λ la conductivité thermique.

A basse fréquence, où $\Lambda\omega \ll v_q^2 C_p$, on sera en régime adiabatique car aucune chaleur n'aura pu être échangée entre les deux parties de l'onde ; par contre, à haute fréquence, les constantes élastiques seront isothermes car la longueur d'onde aura été réduite.

II.1.3 - Liaison entre ces deux théories : méthode des grandes ondes.

Dans les cristaux où les forces d'interaction sont à courte distance : quelques distances interatomiques, il est possible, tout au moins formellement, de relier les constantes élastiques macroscopiques aux coefficients microscopiques $G_{s\vec{l},s'\vec{l}'}$, et aussi aux termes de la matrice dynamique⁽³⁾. Nous nous bornerons à donner le schéma de ce calcul.

Les équations (2) et (5) permettent d'écrire :

$$\vec{U}_{s,\vec{l}} = \frac{1}{\sqrt{M_s}} \vec{W}_s e^{i(\vec{q} \cdot \vec{r}_{s,\vec{l}} - \omega t)} \quad (17)$$

qui, une fois reporté dans (1), donne :

$$\omega^2 W_s^j = \sum_{s',\vec{l}',j} \frac{G_{s\vec{l},s'\vec{l}'}}{\sqrt{M_s M_{s'}}} e^{i\vec{q}(\vec{r}_{s',\vec{l}'} - \vec{r}_{s,\vec{l}})} W_{s'}^{j'} \quad (18)$$

et si on pose :

$$X_{ss'}^{jj'}(\vec{q}) = \frac{e^{i\vec{q}(\vec{r}_{s'} - \vec{r}_s)}}{\sqrt{M_s M_{s'}}} \sum_{\vec{l}} G_{ss'}^{jj'}(\vec{q}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{l}} \quad (19)$$

L'équation (18) n'a de solutions non nulle que si :

$$|\omega^2 \delta_{jj'} \delta_{ss'} - X_{ss'}^{jj'}(\vec{q})| = 0 \quad (20)$$

Dans le cas des grandes longueurs d'onde (élasticité linéaire), les vecteurs d'onde des branches acoustiques sont faibles et on peut appliquer une méthode de perturbations ; on développera les fonctions suivant la variable ($\vec{\epsilon q}$) ; ϵ vaut 1, et ne sert qu'à effectuer le développement.

La nouvelle expression de $X_{ss'}^{jj'}$, est :

$$X_{ss'}^{jj'}(\vec{\epsilon q}) = X_{ss'}^{jj'}(0) + i\epsilon \sum_{j''} X_{ss'}^{jj',j''}(1) q^{j''} + \frac{\epsilon^2}{2} \sum_{j''j'''} X_{ss'}^{jj',j''j'''}(2) q^{j''} q^{j'''} \quad (21)$$

où :

$$X_{ss'}^{jj'}(0) = \frac{1}{\sqrt{M_s M_{s'}}} \sum_{\ell} G_{ss'}^{jj'}(\vec{\ell}) \quad (22)$$

$$X_{ss'}^{jj',j''}(1) = \frac{-1}{\sqrt{M_s M_{s'}}} \sum_{\ell} G_{ss'}^{jj'}(\vec{\ell}) x_{ss'}^{j''}(\vec{\ell}) \quad (23)$$

$$X_{ss'}^{jj',j''j'''}(2) = \frac{-1}{\sqrt{M_s M_{s'}}} \sum_{\ell} G_{ss'}^{jj'}(\vec{\ell}) x_{ss'}^{j''}(\vec{\ell}) x_{ss'}^{j'''}(\vec{\ell}) \quad (24)$$

avec :

$$\vec{x}_{ss'}(\vec{\ell}) = \vec{r}_{s,\ell} - \vec{r}_{s',\ell}$$

De la même façon, on exprime la fréquence et le déplacement relatifs à la $i^{\text{ième}}$ branche acoustique de la courbe de dispersion :

$$\omega(i|\vec{\epsilon q}) = \epsilon \omega^{(1)}(i|\vec{q}) + \frac{\epsilon^2}{2} \omega^{(2)}(i|\vec{q}) + \dots \quad (25)$$

$$W_s^j(i|\vec{\epsilon q}) = W_s^j(0)(i|\vec{q}) + i\epsilon W_s^{j(1)}(i|\vec{q}) + \frac{\epsilon^2}{2} W_s^{j(2)}(i|\vec{q}) + \dots \quad (26)$$

Si on tient compte de ces différents développements pour écrire l'équation (18), on aboutit à 3 équations régissant les 3 ordres des développements en série, et en introduisant la matrice inverse de $X_{ss'}^{jj'}(\ell)$, notée $Y_{ss'}^{jj'}(\vec{\ell})$, alors l'équation du 2^{ème} ordre en ϵ donne :

$$\begin{aligned} \left[\omega^{(1)}(i|\vec{q}) \right]^2 w_s^{j(0)}(i|\vec{q}) &= \frac{1}{2} \sum_{s'j'j''j'''} x_{ss'}^{jj',j''j'''}(2) q^{j''} q^{j'''} w_{s'}^{j'}(i|\vec{q}) \\ &- \sum_{s'j'j''} x_{ss'}^{jj',j''(1)} q^{j''} w_{s'}^{j'}(i|\vec{q}) + \frac{1}{2} \sum_{s'j'} x_{ss'}^{jj'(0)} w_s^{j'(2)}(i|\vec{q}) \end{aligned} \quad (27)$$

Si on exprime dans ce système $\vec{W}_s$ en fonction de $\vec{U}_s$, on montre alors que la condition de solubilité d'un tel système s'écrit :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\sum M_s}{v_m} \right) \left[\omega^{(1)}(i|\vec{q}) \right]^2 U^j(i) &= \sum_j \left\{ \sum_{j''j'''} [jj',j''j'''] q^{j''} q^{j'''} \right. \\ &\quad \left. + \sum_{j''j'''} (jj'',j'j''') q^{j''} q^{j'''} \right\} U^{j'}(i) \end{aligned} \quad (28)$$

où :

$$[jj',j''j'''] = \frac{1}{2v_m} \sum_{ss'} \sqrt{M_s M_{s'}} x_{ss'}^{jj',j''j'''}(2) \quad (29)$$

$$(jj'',j'j''') = - \frac{1}{v_m} \sum_{ss'} \sum_{kk'} Y_{ss'}^{kk'} \left(\sum_{s''} x_{ss'}^{kjj''}(1) \sqrt{M_{s''}} \right)$$

$$\left(\sum_{s''} x_{ss'}^{k'j'j'''}(1) \sqrt{M_{s''}} \right) \quad (30)$$

et où v_m est le volume de la maille du cristal.

On peut remarquer que ces crochets vérifient les égalités suivantes :

$$[jj',j''j'''] = [j'j,j''j'''] = [jj',j'''j''] \quad (31)$$

$$(jj',j''j''') = (j'j,j''j''') = (j''j''',jj') \quad (32)$$

Si on identifie les équations (13) et (28), on s'aperçoit que l'équation ci-dessous doit être satisfaite :

$$\sum_{kl} C_{ij,kl} q^j q^k = \sum_{j''j'''} \left\{ [jj',j''j'''] + (jj'',j'j''') \right\} q^{j''} q^{j'''} \quad (33)$$

Cette relation devant être valable pour n'importe quelle valeur de $\vec{q}$, on doit avoir :

$$C_{ikjl} + C_{iljk} = 2[ij,kl] + (ik,jl) + (il,jk) \quad (34)$$

et, en considérant les symétries des C_{ijkl} et des crochets définis plus

nant, on obtient l'expression d'une constante élastique en fonction de quantités faisant intervenir les paramètres microscopiques :

$$C_{ijkl} = [ik, jl] + [jk, il] - [kl, ij] + (ij, kl) \quad (35)$$

Ce calcul peut théoriquement s'effectuer sur tout cristal non ionique, mais peut être plus ou moins difficile, suivant la complexité des cristaux.

11.2 - Ondes élastiques dans les fluides.

A l'inverse des cristaux, les fluides, et en particulier les liquides, se caractérisent par l'absence d'ordre à longue distance, et on y trouve des atomes dont les positions d'équilibre peuvent se déplacer sur des distances considérables. C'est pour cette raison qu'une théorie dynamique des liquides semblable à celle des cristaux est très difficile à élaborer.

Dans les liquides, sauf ceux qui sont très visqueux, on ne rencontre que des ondes de compression (ondes longitudinales) et si elles ressemblent beaucoup aux ondes de compression dans les solides, les processus microscopiques qui les gouvernent sont assez différents. Toutefois, pour nos expériences de diffusion de la lumière où les excitations considérées ont des grandes longueurs d'ondes par rapport aux distances intermoléculaires, on assimilera le liquide à un milieu diélectrique continu. Ce milieu sera caractérisé par des fonctions thermodynamiques telles que la densité, la compressibilité, les chaleurs spécifiques et la température.

Soit une onde sonore se propageant dans un milieu où règne à l'équilibre une pression p_0 et où la densité d'équilibre est ρ_0 ; alors, sous l'influence de cette onde, on peut écrire :

$$p = p_0 + p' \quad \rho = \rho_0 + \rho' \quad (36)$$

où p' et ρ' sont des petites variations des quantités d'équilibre. Si on écrit l'équation de continuité, où $\vec{v}$ est le vecteur vitesse du fluide :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \rho \vec{v} = 0 \quad (37)$$

On pourra écrire :

$$\frac{\partial \rho'}{\partial t} + \rho_0 \vec{\nabla} \cdot \vec{v} = 0 \quad (38)$$

De même, l'équation d'Euler donnera :

$$\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + \frac{\vec{\nabla} p'}{\rho_0} = 0 \quad (39)$$

Et, en reliant les variations de densité aux variations de pression, on arrive à une équation d'onde qui donne :

$$\vec{v}_q = \sqrt{\left(\frac{\partial p}{\partial \rho}\right)_\alpha} \quad (40)$$

α étant, soit l'entropie, soit la température suivant le régime considéré, la relation entre ces deux dérivées partielles étant :

$$\left(\frac{\partial p}{\partial \rho}\right)_S = \frac{C_p}{C_v} \left(\frac{\partial p}{\partial \rho}\right)_T \quad (41)$$

où C_p et C_v sont les chaleurs spécifiques à pression et à volume constants.

11.3 - Diffusion de la lumière par un milieu matériel.

II.3.1 - Les trois types de diffusion.

On distingue plusieurs types de diffusion :

- la diffusion élastique n'ayant lieu qu'à la seule fréquence excitatrice et due à des défauts présents dans le milieu (poussières dans les fluides, lacunes, impuretés dans les solides).

- la diffusion quasi-élastique (diffusion Rayleigh) due à des fluctuations stationnaires thermodynamiques, susceptibles de modifier la permittivité diélectrique, telles que l'entropie, l'anisotropie, la concentration dans le cas des liquides,...

Cette diffusion se fait en majeure partie sans changement notable de fréquence, mais cause un étalement symétrique de part et d'autre de la fréquence incidente.

- la diffusion inélastique ou diffusion Brillouin créée par des fluctuations qui se propagent dans la matière avec une vitesse non nulle, telle que les fluctuations de densité (phonons). Mais cette diffusion peut être due aussi à d'autres excitations (magnons...) ⁽⁵⁾. Cette diffusion est caractérisée par un étalement symétrique autour d'une fréquence différente de l'onde incidente.

La figure 2 représente les spectres créés par ces 3 types de diffusion.

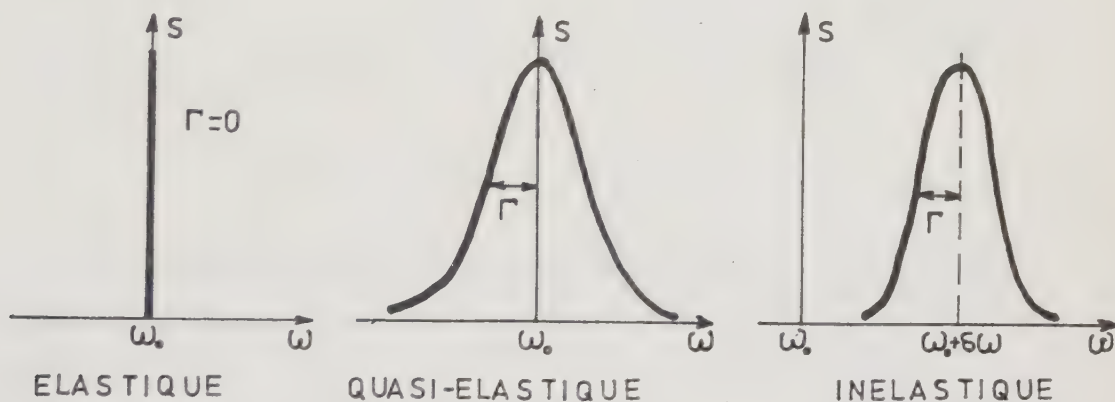


Figure 2 | Spectres des différentes diffusions.

ω_0 est la pulsation de l'onde incidente, et Γ la demi-longueur à mi-hauteur des raies.

II.3.2 - Diffusion inélastique de la lumière par une onde ultrasonore.

II.3.2.1 - Analogie avec la diffusion des rayons X.

On peut décrire l'interaction de l'onde lumineuse avec l'onde élastique de différentes façons, la plus simple étant certainement l'analogie avec la diffusion des rayons X par un réseau cristallin figé.

Une onde de compression élastique de fréquence ν fait apparaître le milieu dans lequel elle se propage comme un milieu stratifié,

formé de couches denses (zones de compression) et de couches peu denses (zones détendues) ; si on identifie les couches denses aux plans réticulaires d'un réseau figé et les couches peu denses aux espaces interréticulaires de ce réseau, alors la relation de Bragg donne pour une onde incidente de fréquence ν_0 la condition d'interférences constructives dans la direction θ :

$$\frac{\nu}{\nu_0} = 2 n \frac{v_q}{c} \sin \frac{\theta}{2} \quad (42)$$

où v_q est la vitesse du son, c la célérité de la lumière dans le vide, n l'indice de réfraction du milieu et θ un angle défini par la figure 3.

Comme de plus ces strates diffusantes sont animés d'un mouvement de translation avec une vitesse v_q , il en résulte un effet Doppler dont l'approximation au premier ordre donne la relation concernant l'écart en fréquence $\delta\nu$

$$\delta\nu = \pm 2n \nu_0 \frac{v_q}{c} \sin \frac{\theta}{2} = \pm \nu \quad (43)$$

L'expression relative à la correction du second ordre sera développée au paragraphe suivant :

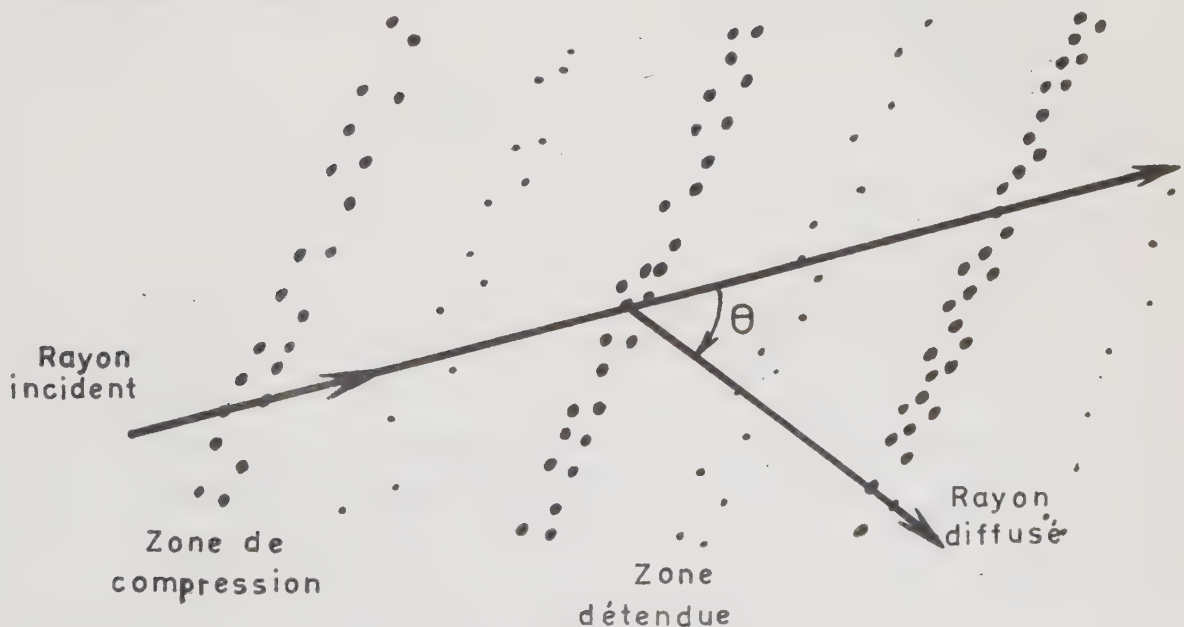


Figure 3 | Géométrie de la diffusion.

II.3.2.2 - Collision d'un photon et d'un phonon.

Une autre façon de décrire cette interaction est de la considérer comme une collision entre un phonon et un photon.

Deux cas sont possibles :

- la diffusion Stokes où un photon crée un phonon et un photon d'énergie inférieure au photon incident,

- la diffusion anti-Stokes, où un photon rencontre un phonon, de ce choc naît un photon d'énergie supérieure au photon incident, et un phonon est anihilé.

Les indices n_0 et n' sont les valeurs des indices de réfraction dans les directions du photon incident et du photon diffusé.

La figure 4 représente les deux possibilités de collision.

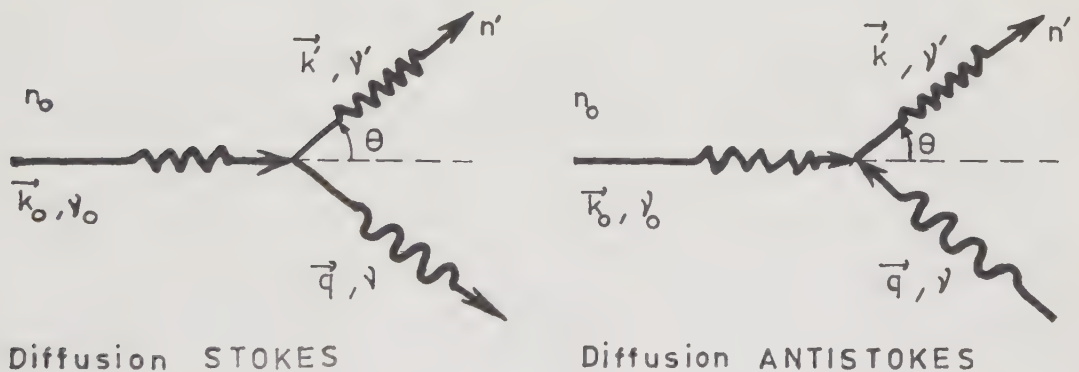


Figure 4 | Diffusion Stokes et anti-Stokes.

En écrivant la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, on obtient les deux équations :

$$\nu = \pm (\nu_0 - \nu') \quad (44)$$

$$\vec{q} = \vec{k}_0 - \vec{k}' \quad (45)$$

Sachant que $\omega = qv_{\vec{q}}$ et en reportant l'équation (45) dans (44), on obtient pour les pulsations stokes (S) et anti-Stokes (AS), les expressions :

$$\omega_S = v_q \left[k_o^2 \left(1 + \frac{n'^2}{n_o^2} - 2 \frac{n'}{n_o} \cos \theta \right) + 2 k_o k' \left(\cos \theta - \frac{n'}{n_o} \right) \frac{\omega_S}{\omega'} + k'^2 \left(\frac{\omega_S}{\omega'} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (46)$$

$$\omega_{AS} = v_q \left[k_o^2 \left(1 + \frac{n'^2}{n_o^2} - \frac{2n'}{n_o} \cos \theta \right) - 2 k_o k' \left(\cos \theta - \frac{n'}{n_o} \right) \frac{\omega_{AS}}{\omega'} + k'^2 \left(\frac{\omega_{AS}}{\omega'} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (47)$$

L'approximation au 1er ordre donne dans le cas général où $n_o \neq n'$:

$$\omega_{AS}^{(1)} = \omega_S^{(1)} = \omega_o \frac{n_o v_q}{C} \left[\left(1 - \frac{n'}{n_o} \right)^2 + 4 n_o n' \sin^2 \frac{\theta}{2} \right]^{1/2} \quad (48)$$

et si $n_o = n'$ (cas des fluides ou des cristaux isotropes) :

$$\omega_{AS}^{(1)} = \omega_S^{(1)} = 2 \omega_o \frac{n v_q}{C} \sin \frac{\theta}{2} \quad (49)$$

On voit que le décalage en fréquence au 1er ordre sera symétrique de part et d'autre de la fréquence incidente ; mais au second ordre, on obtient :

$$\frac{\omega_S^{(2)}}{\omega_o} = \frac{2n_o v_q}{C} \left[\frac{n_o v_q}{C} \left(\cos \theta - \frac{n'}{n_o} \right) + \sqrt{\frac{n_o^2 v_q^2}{4C^2} \left(\cos \theta - \frac{n'}{n_o} \right)^2 + \frac{1}{4} + \frac{n'^2}{4n_o^2} - \frac{2n'}{4n_o} \cos \theta} \right] \quad (50)$$

$$\frac{\omega_{AS}^{(2)}}{\omega_o} = \frac{2n_o v_q}{C} \left[- \frac{n_o v_q}{C} \left(\cos \theta - \frac{n'}{n_o} \right) + \sqrt{\frac{n_o^2 v_q^2}{4C^2} \left(\cos \theta - \frac{n'}{n_o} \right)^2 + \frac{1}{4} + \frac{n'^2}{4n_o^2} - \frac{2n' \cos \theta}{4n_o}} \right] \quad (51)$$

et dans le cas d'un milieu isotrope :

$$\frac{\omega_{AS}^{(2)}(S)}{\omega_o} = \frac{2n v_q}{C} \sin \frac{\theta}{2} \left(1 \pm \frac{nv_q}{C} \sin \frac{\theta}{2} \right) \quad (52)$$

La figure 5 montre la position de ces différentes fréquences sur l'axe $(\omega - \omega_o)$.

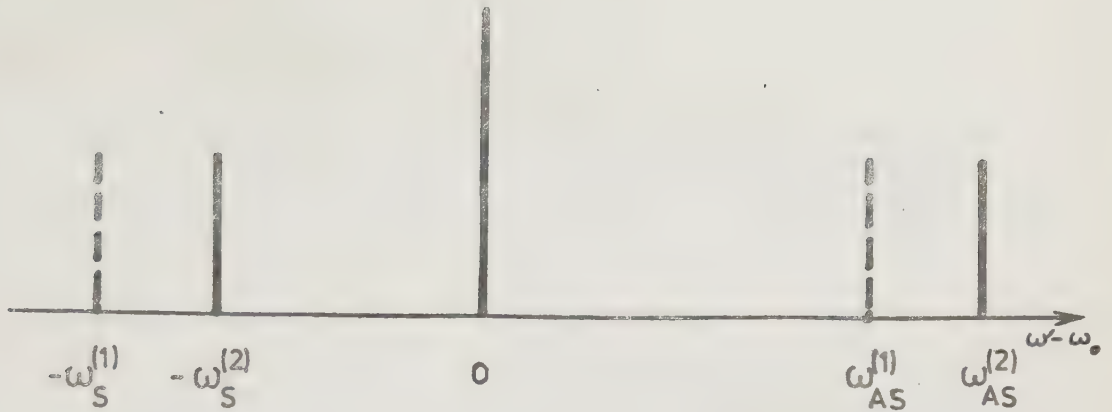


Figure 5 | Différents ordres de l'approximation pour les équations (46) et (47).

On voit qu'au second ordre les positions des raies diffusées ne sont pas symétriques par rapport à la fréquence excitatrice, mais le sont par rapport à une fréquence égale à $(\omega_0 + \frac{2n^2 v_s^2}{c^2} \sin^2 \frac{\theta}{2})$. Mais cet effet est du second ordre et le décalage en fréquence ne serait que de 70 MHz pour le diamant alors que la vitesse du son y est de l'ordre de 18 000 m/s. Cet effet n'a jamais pu être mis en évidence.

CHANDRASEKHARAN⁽⁶⁾ a le premier calculé cet effet et a montré qu'il était assimilable à une correction relativiste de l'effet Döppler.

Les résultats obtenus dans ces deux paragraphes appellent deux remarques :

- Un corps qui ne serait pas le siège d'ondes thermoélastiques ne diffuserait de la lumière qu'à la fréquence incidente et aux fréquences Raman.

- Ensuite, on voit à l'examen de (43) que la fréquence de l'onde ultrasonore considérée dépend du choix de l'angle de diffusion sous lequel on effectue la mesure ; la fréquence étant maximale dans le cas d'une retrodiffusion ($\theta = 180^\circ$).

III.3.2.3 - Intensité de la lumière diffusée.

Ici encore, il existe différentes façons d'arriver à l'expression de la lumière diffusée ; nous en citerons quelques-unes en se bor-

nant à donner le raisonnement qui conduit aux résultats.

a) Traitement thermodynamique.

Une onde élastique, se propageant dans un milieu matériel, provoque des modifications locales de sa densité et donc de sa constante diélectrique : $\epsilon(\vec{r}, t)$.

On peut écrire :

$$\epsilon(\vec{r}, t) = \epsilon_0 + \sum_{\vec{q}, \omega} \epsilon_{\vec{q}, \omega} e^{i(\vec{q} \cdot \vec{r} - \omega t)} \quad (53)$$

$$= \epsilon_0 + \Delta \epsilon$$

où ϵ_0 est la valeur à l'équilibre et $\epsilon_{\vec{q}, \omega}$ la composante de Fourier, pour la pulsation ω et le vecteur d'onde $\vec{q}$, de la variation de la constante diélectrique.

Si une onde lumineuse monochromatique, définie par sa composante champ électrique, $\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 e^{i(\vec{k}_0 \cdot \vec{r} - \omega_0 t)}$, traverse le cristal, on aura une polarisation supplémentaire $\Delta P = \Delta \epsilon \cdot \frac{\vec{E}_0}{4\pi}$ qui conduira à une intensité diffusée I_S , définie par⁽⁷⁾ :

$$I_S = I_0 \frac{\pi^2}{R^2 \lambda_0^4} V^2 \sin^2 \phi \langle \Delta \epsilon^2 \rangle \quad (54)$$

I_0 et λ_0 étant l'intensité et la longueur d'onde de la lumière incidente, $\vec{R}$ étant le vecteur joignant le volume diffusant V au point d'observation, ϕ l'angle des vecteurs $\vec{E}_0$ et $\vec{R}$ et $\langle \Delta \epsilon^2 \rangle$ la fluctuation quadratique moyenne de la constante diélectrique.

La première évaluation de $\langle \Delta \epsilon^2 \rangle$ a été obtenue par EINSTEIN (cf. (7)) en considérant $\Delta \epsilon$ comme une fonction thermodynamique de la densité ρ et de la température T :

$$\Delta \epsilon = \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \right)_T \Delta \rho + \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial T} \right)_\rho \Delta T \quad (55)$$

Il vient alors :

$$I_S = I_0 \frac{V \pi^2}{R^2 \lambda_0^4} \sin^2 \phi (\epsilon - 1)^2 \left(\frac{\epsilon + 2}{3} \right)^2 k_B T \beta_T \quad (56)$$

où k_B est la constante de Boltzmann et β_T le coefficient de compressibilité isotherme.

Une autre déduction de $\langle \Delta \epsilon^2 \rangle$ a été obtenue par LANDAU et PLACZEK⁽⁸⁾ qui ont considéré la constante diélectrique comme fonction de l'entropie S et de la pression P :

$$\Delta \epsilon = \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial S} \right)_P \Delta S + \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial P} \right)_S \Delta P \quad (57)$$

D'après LANDAU et PLACZEK, le premier terme est relatif à des fluctuations locales d'entropie qui ne se propagent pas et constituent la diffusion Rayleigh quasi élastique, alors que le second terme correspond à des fluctuations adiabatiques de pression (ondes sonores) qui se propagent et sont la cause du doublet Brillouin.

L'expression obtenue avec ces hypothèses est alors :

$$I_S = I_0 \frac{\pi^2 V}{R^2 \lambda_o^4} \sin^2 \phi \left[\underbrace{\left(\frac{\partial \epsilon}{\partial T} \right)_P^2 \frac{k_B T^2}{\rho_o C_P}}_{\text{Rayleigh}} + \underbrace{\left(\rho_o \frac{\partial \epsilon}{\partial P} \right)_T^2 k_B T \beta_S}_{\text{Brillouin}} \right] \quad (58)$$

et avec l'aide de quelques simplifications, on aboutit à la relation dite de LANDAU-PLACZEK :

$$\frac{I_C}{2I_B} = \frac{\beta_T - \beta_S}{\beta_S} = \frac{C_P - C_V}{C_V} = \gamma - 1 \quad (59)$$

où I_C est l'intensité Rayleigh diffusée et I_B l'intensité Brillouin d'une raie du doublet.

A l'examen de cette équation, on réalise que l'intensité diffusée sans changement de fréquence doit être faible par rapport aux intensités Brillouin diffusées par les liquides, et encore plus pour les solides.

On peut toutefois remarquer que la diffusion Rayleigh correspond à des phénomènes lentement variables (lent amortissement des fluctuations d'entropie), alors que la diffusion Brillouin est due à des ondes hypersonores dont l'ordre de grandeur de la fréquence est le gigahertz. Il semble qu'il serait bon de tenir compte d'une éventuelle dispersion pouvant intervenir dans les paramètres invoqués.

C'est ce qu'a réalisé FABELINSKII⁽⁹⁾ avec l'équation :

$$\frac{I_c}{2I_B} = \frac{\left[\left(\rho \frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \right)_T^2 \frac{\alpha^2 T}{\rho_o C_p} \right]_{\text{statique}}}{\left[\left(\rho \frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \right)_T^2 \beta_S \right]_{\text{hypersonore}}} \quad (60)$$

D'après l'étude réalisée sur différents liquides par CUMMINS et GAMMON⁽¹⁰⁾, on constate que les résultats expérimentaux sont en meilleur accord avec l'équation (60) qu'avec (59), mais l'accord n'est pas parfait.

b) Analogie avec la diffusion inélastique des neutrons.

Le formalisme de la diffusion inélastique des neutrons conduit à⁽¹¹⁾ :

$$\frac{d^2 \sigma}{dv' d\Omega} = A_{\vec{q}} S(\omega, \vec{q}) \quad (61)$$

où $d^2 \sigma$ est la section efficace différentielle de diffusion, $d\Omega$ l'angle solide élémentaire dans lequel sont compris les rayons diffusés, $A_{\vec{q}}$ un facteur qui dépend de l'interaction entre le corps et la particule diffusée, et où $S(\omega, \vec{q})$ est la double transformée de Fourier par rapport à l'espace et au temps de la fonction d'autocorrélation de la densité de phonons $n(\vec{q})$; c'est un facteur de structure.

En appliquant ces résultats à la diffusion de la lumière, MOUNTAIN⁽¹²⁾ a montré que, dans le cas des fluides $S(\omega, \vec{q})$ est défini par l'équation (62) :

$$S(\omega, \vec{q}) = \langle |n(\vec{q})|^2 \rangle \left[\frac{c_p - c_v}{c_p} \frac{\frac{2\Lambda q^2}{\rho_o c_p}}{\frac{\Lambda q^2}{\rho_o c_p} + \omega^2} + \frac{c_v}{c_p} \left(\frac{\Gamma_B q^2}{(\Gamma_B q^2)^2 + (\omega + v_{\vec{q}})^2} + \frac{\Gamma_B q^2}{(\Gamma_B q^2)^2 + (\omega - v_{\vec{q}})^2} \right) \right] \quad (62)$$

où $\Gamma_B q^2$ est la demi-largeur à mi-hauteur de la raie Brillouin. Elle peut être reliée à la viscosité de volume η_v , à la viscosité de cisaillement η_s et au coefficient d'atténuation spatial α (dB/m) :

$$q^2 \Gamma_B = \frac{1}{2\rho_0} \left[\frac{4}{3} \eta_s + \eta_b + \Lambda \frac{C_p - C_v}{C_p C_v} \right] \quad (63)$$

$$\Gamma_B = \frac{\alpha v q}{q^2} \quad (64)$$

La figure 6 représente la variation du facteur de structure $S(\vec{q}, \omega)$ dans le cas d'une diffusion par un fluide ; on peut remarquer que ces trois raies ont une forme lorentzienne.

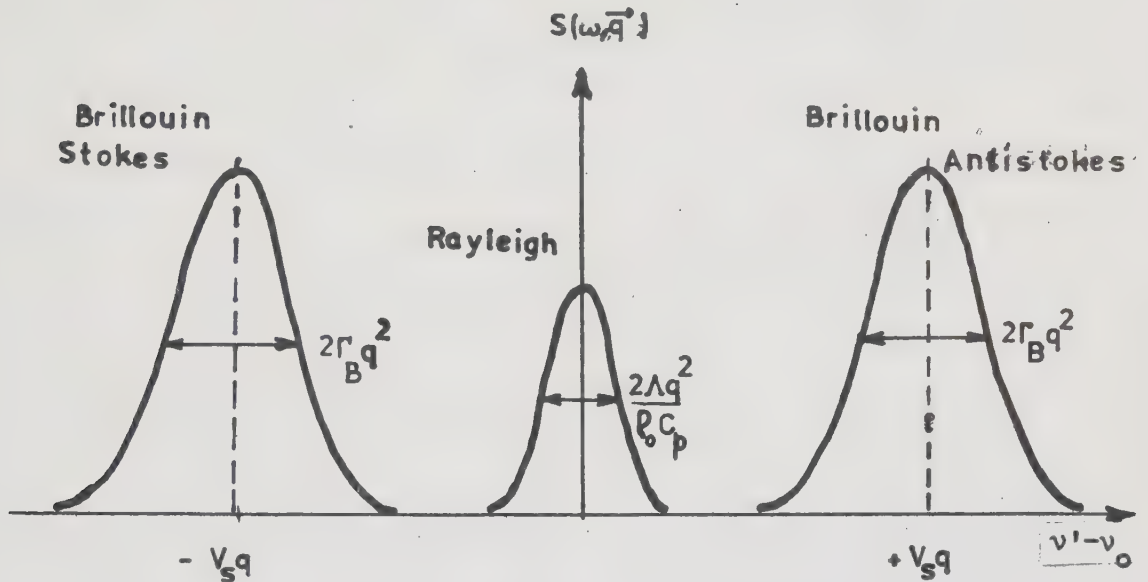


Figure 6 | Représentation graphique du facteur de structure $S(\omega, \vec{q})$.

L'expression (62) du facteur de diffusion correspond à des liquides composés de petites molécules ; par contre, pour des liquides plus complexes, formés de grosses molécules, MOUNTAIN⁽¹³⁾ a montré qu'il s'ajoute à la raie Rayleigh une diffusion quasi-élastique indépendante de l'angle d'observation. Cette diffusion supplémentaire serait due à la réorientation des molécules du liquide par relaxation entre les degrés de liberté internes et les degrés de liberté de translation. De plus, cette lumière n'est pas polarisée (pas de facteur $\sin^2 \phi$) et son facteur de diffusion s'écrit :

$$S_{RD}(\omega) \propto \frac{\Gamma_{RD}^2}{(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma_{RD}^2} \quad (65)$$

où Γ_{RD} est l'inverse d'un temps de réorientation caractéristique des molécules.

On utilise les deux traitements précédents pour décrire la diffusion de la lumière par les liquides et les gaz, mais l'existence d'une théorie dynamique des solides permet d'obtenir des renseignements supplémentaires.

c) Tenseurs photoélastiques.

Soit $\vec{\epsilon}_0$ le tenseur diélectrique du cristal figé ; on définit le tenseur inverse diélectrique $\vec{B}_0 = \vec{\epsilon}_0^{-1}$; si ce cristal devient le siège d'ondes thermoélastiques, il apparaît alors une variation de la constante diélectrique due à une variation locale de la densité, ce qui entraîne une variation du tenseur inverse diélectrique noté $\vec{\Delta B}$.

On définit le tenseur inverse diélectrique pour un cristal perturbé :

$$\vec{B} = \vec{B}_0 + \vec{\Delta B} \quad (66)$$

Le terme général de $\vec{\Delta B}$ est défini par⁽¹⁴⁾ :

$$\Delta B_{ij} = P'_{ij,kl} \frac{\partial U_k}{\partial x_l} \quad (67)$$

$$\text{où :} \quad P'_{ij,kl} = P_{ij,(kl)} + P_{ij,[kl]} \quad (68)$$

avec $P_{ij,(kl)}$ un terme général du tenseur photoélastique défini par PÖCKELS et qui possède les symétries suivantes :

$$P_{ij,(kl)} = P_{ji,(kl)} = P_{ji,(lk)} \quad (69)$$

$P_{ij,[kl]}$ est un terme non symétrique par rapport à l'échange de k et l , ce tenseur a été introduit par NELSON et LAX pour tenir compte des rotations qui apparaissent dans un cristal biréfringent soumis à des efforts de cisaillement.

* On applique la même convention de sommation qu'au paragraphe II.1.2

Dans le cas où les axes cristallographiques coïncident avec les directions principales de l'ellipsoïde des indices, le terme général $P_{ij, [kl]}$ s'écrit :

$$P_{ij, [kl]} = \frac{1}{2} (\delta_{il} \delta_{kj} - \delta_{ik} \delta_{lj}) \left(\frac{1}{n_i^2} - \frac{1}{n_j^2} \right) \quad (\text{sans sommation}) \quad (70)$$

Il résulte de ce choix du tenseur photoélastique que la variable adéquate, pour obtenir la variation du tenseur inverse diélectrique, est le gradient du déplacement $\frac{\partial U_k}{\partial x_l}$ et non la déformation définie par (10).

La relation liant $\overrightarrow{\Delta B}$ à $\overrightarrow{\Delta \epsilon}$ peut s'écrire⁽³⁾ :

$$\overrightarrow{\Delta \epsilon} = - \overrightarrow{\epsilon}_0 \overrightarrow{\Delta B} \overrightarrow{\epsilon}_0 \quad (71)$$

Le terme général de $\overrightarrow{\Delta \epsilon}$ peut s'écrire :

$$\Delta \epsilon_{ij} = -\epsilon_{oil} P'_{lm, (np)} \epsilon_o m_j \frac{\partial U_n}{\partial x_p} \quad (72)$$

On peut employer aussi la notation de VOIGT pour le tenseur photoélastique, mais pour la partie non symétrique du tenseur, on devra faire intervenir une petite modification :

$x \sim 1$, mais $x y \sim 6$, alors que $yx \sim 6$.

Si on tient compte que U_n est une onde plane monochromatique définie par (12), on peut remplacer le terme $\frac{\partial U_n}{\partial x_p}$ par le produit $q U(\hat{q}_p \hat{U}_n)$ où la notation $\hat{}$ signifie cosinus directeur du vecteur avec la direction relative à l'indice.

On peut, d'autre part, connaître la valeur de U , car ce déplacement est le fait d'une onde thermoélastique qui est en équilibre thermodynamique, ce qui entraîne :

$$\frac{\rho_o}{2} \omega^2 U^2 = k T \quad (73)$$

d'où :

$$\langle q u^2 \rangle = \frac{kT}{2\rho v_q^2} \quad (74)$$

On arrive à l'expression générale de l'intensité diffusée et si on appelle $\vec{e}_o$ et $\vec{e}_s$ les vecteurs unitaires des directions de polarisation des champs électriques incident et diffusé, alors :

$$I_s = I_o \frac{\pi^2}{R^2} \frac{V}{\lambda_o^4} \frac{kT}{2\rho_o} \frac{n'}{v_o^2} \frac{n'}{n_o} (n_i^2 n_j^2 e_{sj} P'_{ij,(kl)} \hat{u}_k \hat{q}_l e_{oi})^2 \quad (75)$$

où n_i désigne l'indice de réfraction dans la direction x_i .

Le terme entre parenthèses de l'équation (75) peut être obtenu en fonction de sommes simples des tenseurs photoélastiques pour différentes géométries de diffusion et différentes classes cristallographiques. Dans ⁽¹⁵⁾, on peut trouver ces renseignements avec le tenseur photoélastique $P'_{ij,(kl)}$ et dans ⁽¹⁶⁾, on peut trouver les renseignements relatifs à des cristaux non biréfringents avec le tenseur de Pöckels.

II.3.3 - Renseignements théoriquement déductibles d'un spectre de diffusion Rayleigh-Brillouin.

On peut représenter les différents paramètres susceptibles d'être mesurés par un tableau analogue à celui présenté par L. BOYER ⁽¹⁷⁾.

Pour pouvoir comparer les intensités diffusées par les différents phénomènes, on utilise le facteur de Rayleigh défini comme suit :

$$R_{\alpha\beta} = \frac{1}{V} \frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{R^2}{V} \frac{I_s^\alpha}{I_o^\beta} \quad (76)$$

où les indices α et β désignent un état polarisatoire des ondes incidentes et réfléchies. Notons que $R_{\alpha\beta}$ a les dimensions d'un inverse d'une longueur.

On voit alors combien il est intéressant d'obtenir un spectre Brillouin, qui en une seule expérience peut donner des renseignements sur divers paramètres :

- la vitesse du son,
- le coefficient d'atténuation des ondes élastiques,
- la conductivité thermique,

D'après les ordres de grandeur cités, on constate que l'obtention d'un tel spectre nécessite la détection d'un flux lumineux très faible avec un pouvoir de résolution très élevé.

RAIE	FACTEUR DE RAYLEIGH (cm^{-1})	PARAMETRE MESURE	ORDRE DE GRANDEUR	CAUSE DU PHENOMENE	GRANDEURS DEDUCTIBLES
Rayleigh polarisée	$3 \cdot 10^{-6}$ (liquides)	largeur	10 à 100 MHz (liquides)	fluctuations d'entropie	conductivité thermique
Rayleigh dépolarisée	10^{-5}	largeur	1 à 10 GHz	fluctuations d'orientation	temps de réorientation des molécules
Brillouin polarisée	10^{-6} à 10^{-8} (liquide) (solides)	décalage	1 à 100 GHz	ondes élastiques	vitesse du son constantes élasti- ques
		largeur	0,1 à 1 GHz (liquid.) 20 à 300 MHz (solides)	chocs entre pho- tons	coefficient d'atté- nuation spatiale.

II.3.4 - Différences avec l'effet Raman.

Fondamentalement, la différence est minime, vu que les deux diffusions sont occasionnées par des phonons ; phonons optiques pour l'effet Raman, phonons acoustiques pour l'effet Brillouin.

De cette différence découlent quelques remarques :

- On dit que pour le spectre Raman du 1er ordre, on se trouve au centre de la zone de Brillouin ; cela n'est pas admissible pour l'effet Brillouin car au centre de la zone, la fréquence des ondes acoustiques est nulle, néanmoins la diffusion a lieu pour une région très voisine du centre ($q \approx \frac{1}{1000} \frac{\pi}{a}$).

- Il s'en suit une différence en ce qui concerne les directions de diffusion ; les fréquences où se situent les raies diffusées par effet Raman est quasiment indépendante de l'angle de diffusion, la cause en étant la planéité des surfaces de dispersion engendrées par les branches optiques au centre de la zone ; par contre, la fréquence relative aux raies Brillouin dépend fortement de l'angle de diffusion car les surfaces de dispersion acoustiques tendent de façon anisotrope vers zéro au centre de la zone.

- L'ordre de grandeur du décalage en fréquence provoqué par l'effet Brillouin étant beaucoup plus faible que celui dû à la diffusion Raman, il a été nécessaire de construire un nouvel appareillage avec une résolution beaucoup plus élevée ; cela bien que la géométrie de diffusion soit commune aux deux types d'expériences.

III - TECHNIQUES EXPERIMENTALES.

III.1 - Conditions requises pour l'observation de la diffusion Brillouin.

Nous avons constaté au paragraphe précédent que l'observation et surtout les mesures consécutives à un enregistrement de spectre Rayleigh-Brillouin nécessitent un appareillage dont le pouvoir de résolution est d'environ cent fois supérieur à celui d'un spectre Raman classique. De plus, le spectromètre doit être très lumineux car les intensités des raies Brillouin sont très faibles.

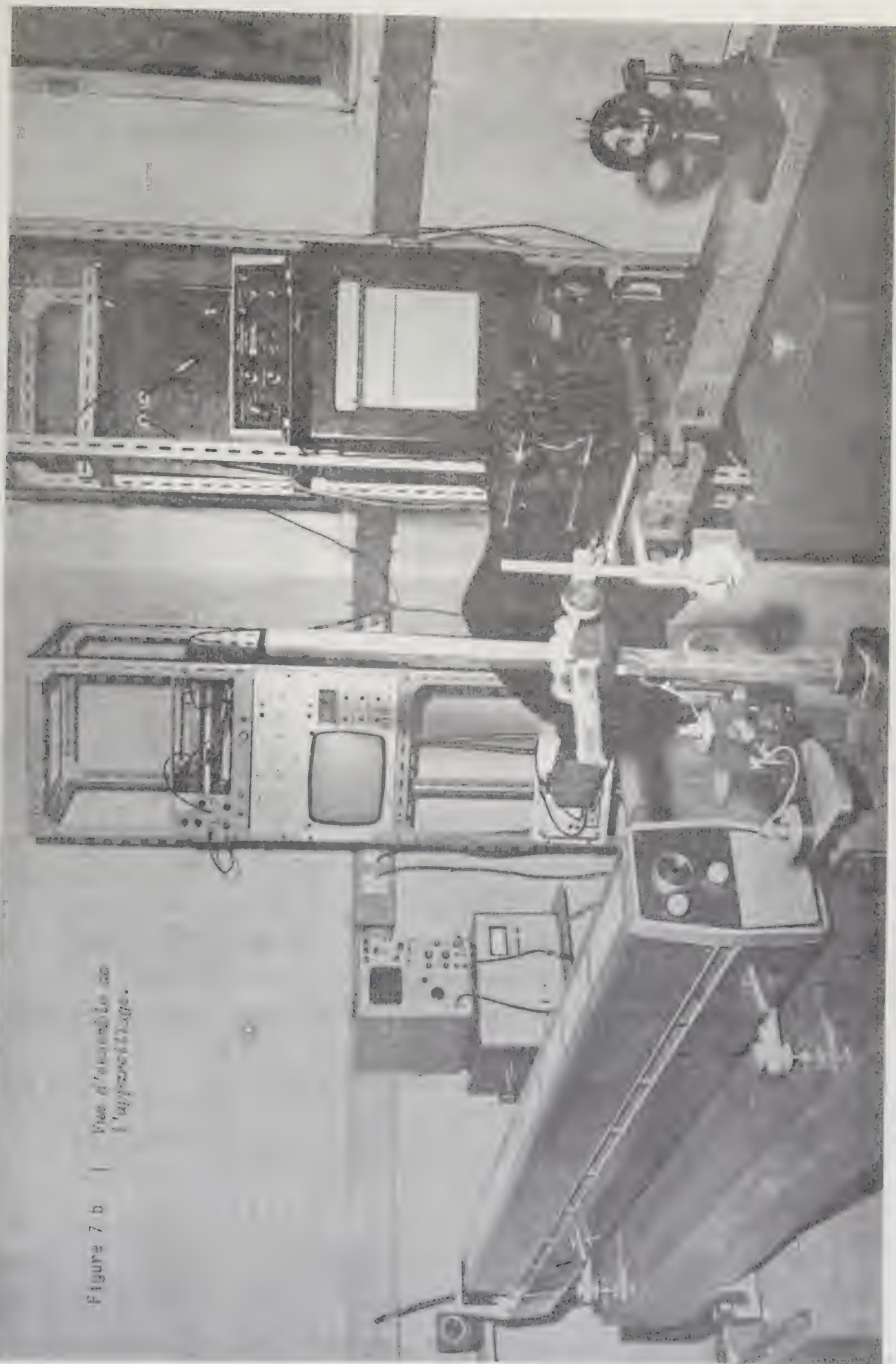
Mais il faut encore disposer d'une source lumineuse dont la largeur spectrale doit être faible devant le décalage en fréquence produit par l'effet Brillouin ; et il est intéressant d'utiliser une seule raie si on veut éviter les déconvolutions laborieuses.

III.2 - Appareillage utilisé.

III.2.1 - Disposition générale.

Comme le laboratoire où ont été effectuées ces expériences est situé au 4^e étage, il a été nécessaire d'isoler mécaniquement l'ensemble de notre appareillage et ainsi tous les éléments optiques reposent sur un banc d'optique Micro-Contrôle qui est posé par l'intermédiaire d'un système d'appui point-trait-plan sur deux bacs de sables dont les dimensions approximatives sont $0,5 \times 0,5 \times 0,5 \text{ m}^3$. Entre le sable et le banc sont intercalées une dalle de granite et une couche de 10 cm de mousse

Figure 7 b | Vue d'ensemble de l'appareillage.



de polyuréthane pour essayer de filtrer les vibrations mécaniques transmises par le bâtiment. Le laser utilisé repose sur un bâti analogue à celui que nous venons de décrire.

La Fig. 7a montre le schéma général du montage utilisé et la Fig. 7b une vue d'ensemble de l'appareillage :

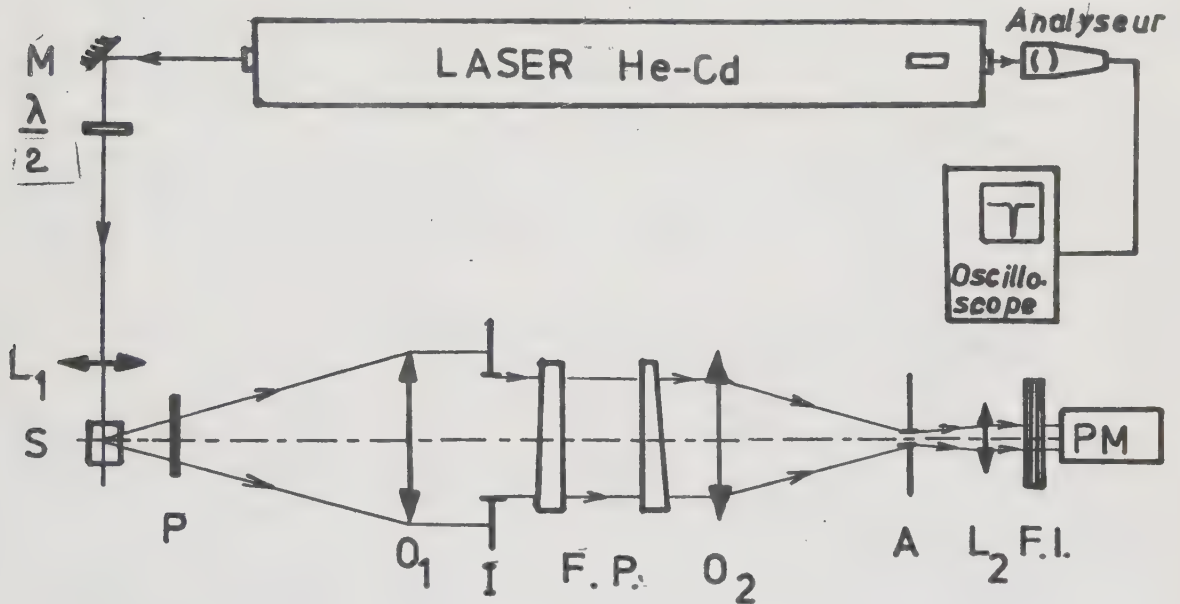


Figure 7a | Schéma général.

M : miroir de renvoi ; $\lambda/2$: lame demi-onde ; L_1 : lentille de focalisation du faisceau ; P : filtre polaroïd ; O_1 : objectif d'entrée du F.P. ; I : iris d'entrée du F.P. ; O_2 : objectif de sortie ; A : trou explorateur ; L_2 : oculaire ; F.I. : filtre interférentiel ; P.M. : photomultiplicateur.-

Les conditions énoncées précédemment nous ont conduit à des solutions technologiquement différentes de celles d'une étude réalisée il y a quelques temps dans ce laboratoire. Envisageons maintenant les caractéristiques des appareils utilisés.

III.2.2 - L'interféromètre de Fabry-Perot.

III.2.2.1 - Principe de fonctionnement.

L'interféromètre de Fabry-Perot, en abrégé, le Fabry-Perot, ou encore le F.P., est constitué principalement de deux miroirs semi-réfléchissants, ayant une géométrie bien définie ; ils peuvent être plans : on a alors affaire à un Fabry-Perot-Plan (F.P.P.), ou sphériques (F.P.S.). Nous n'étudierons que le premier cas, car c'est celui qui est le plus commode d'emploi pour la diffusion Brillouin.

Si comme dans le cas de la Fig. 8, un rayon lumineux tombe avec l'incidence i sur un des miroirs de l'interféromètre, alors les rayons transmis présenteront entre eux une différence de phase ϕ , telle que :

$$\phi = \frac{4\pi nd \cos i}{\lambda} = 2\omega nd \cos i = 4\pi \sigma nd \cos i \quad (77)$$

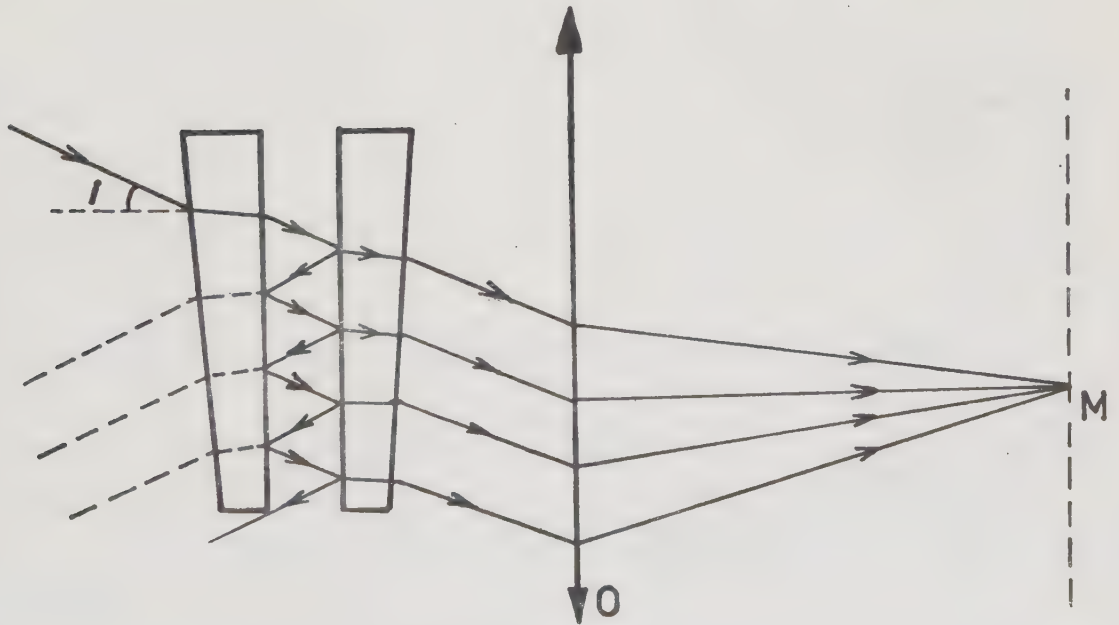


Figure 8 | Schéma de principe d'un F.P.P.

Les rayons transmis se composent soit à l'infini, soit dans le plan focal de l'objectif de sortie au point M.

Notons T et R la transmission et la réflexion d'un miroir supposé parfaitement plan ; on trouve alors, en exprimant le rapport des intensités $I(M)$ et I_0 avant la traversée du F.P.P. que :

$$\mathcal{A} = \frac{I}{I_0} = \frac{T^2}{(1-R)^2} \frac{1}{1 + \frac{4R}{(1-R)^2} \sin^2 \frac{\phi}{2}} \quad (78)$$

Il ressort de la symétrie circulaire de l'interféromètre que la lumière en sort sous forme d'anneaux concentriques, de rayon variable, suivant une loi de la forme $r_k \sim \sqrt{k}$, où r_k est le rayon de l'anneau d'ordre k .

III.2.2.2 - Paramètres définissant le fonctionnement et les qualités d'un F.P.P. idéal.

Tout d'abord, dans la fonction d'Airy (78), interviennent : la réflexion, la transmission des miroirs, et comme ils absorbent une partie de la lumière, on définit un facteur d'absorption tel que :

$$T + R + A = 1 \quad (79)$$

ce qui permet d'exprimer la transparence du Fabry-Perot comme :

$$\tau_A = \left(\frac{T}{1-R} \right)^2 = \left(1 - \frac{A}{1-R} \right)^2 \quad (80)$$

Ce coefficient ne diffère de l'unité qu'à cause de l'absorption des lames.

Actuellement, on utilise comme revêtement semi-réfléchissant des minces couches diélectriques, choisies pour avoir une alternance d'épaisseurs à haut et bas indices de réfraction et de telle façon que l'épaisseur optique de chaque couche soit égale au quart de la longueur d'onde de la radiation qu'on veut réfléchir. Cet empilement peut être plus réflecteur qu'une couche mince métallique et surtout présente l'avantage d'une beaucoup plus faible absorption ($A \sim 10^{-3}$).

A l'examen de l'expression (80), on constate qu'à absorption constante, la transparence de l'étalon est une fonction décroissante du pouvoir réflecteur des miroirs.

La fonction d'Airy est une fonction périodique dont le graphe est représenté par la Fig. 9 :

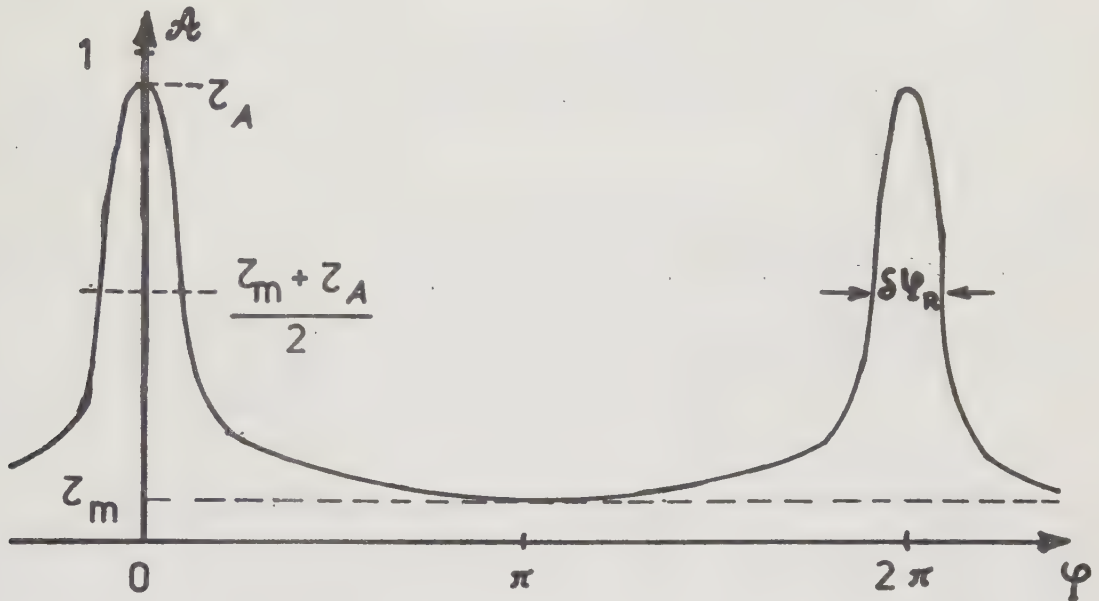


Figure 9 | Variation de la fonction d'Airy caractéristique d'un F.P.P. supposé parfait.

τ_m est la transmission minimum de l'étalon et $\delta\phi_R$ la largeur à mi-hauteur d'un pic de $\mathcal{A}(\phi)$.—

On voit qu'à l'aide d'un changement de variables du type $x = k\phi$, on peut obtenir une courbe semblable pour $\mathcal{A}(\sigma)$, ou $\mathcal{A}(nd)$.

Cette périodicité de la fonction d'Airy permet de définir un coefficient de finesse égal au rapport de la période sur la largeur à mi-hauteur d'un pic de la fonction d'Airy ; ce coefficient de finesse est habituellement appelé "finesse réflectrice" car il ne dépend que de la réflectivité des miroirs et s'exprime comme :

$$F_R = \frac{2\pi}{\delta\phi_R} = \frac{\pi \sqrt{R}}{1-R} \quad (81)$$

Sur une courbe $\mathcal{H}(\sigma)$, F_R correspond au nombre de raies spectrales monochromatiques (largeur nulle) que l'on pourrait résoudre entre deux pics ; ce dernier intervalle étant appelé intervalle spectral libre et son expression est :

$$\Delta\sigma = \frac{1}{2\pi n d \cos i} \quad (82)$$

Si on appelle $\delta\sigma_R$ la largeur en fréquence d'un pic de la fonction $\mathcal{H}(\sigma)$, alors la finesse réflectrice s'exprime comme le rapport de $\Delta\sigma$ sur $\delta\sigma_R$.

On constate aisément que la résolution, par l'intermédiaire de la finesse réflectrice, et la luminosité de l'interféromètre parfait varient en sens inverse ; cela est représenté sur la figure 10 où on a porté les variations de la finesse réflectrice et de la transparence en fonction du pouvoir réflecteur des miroirs.

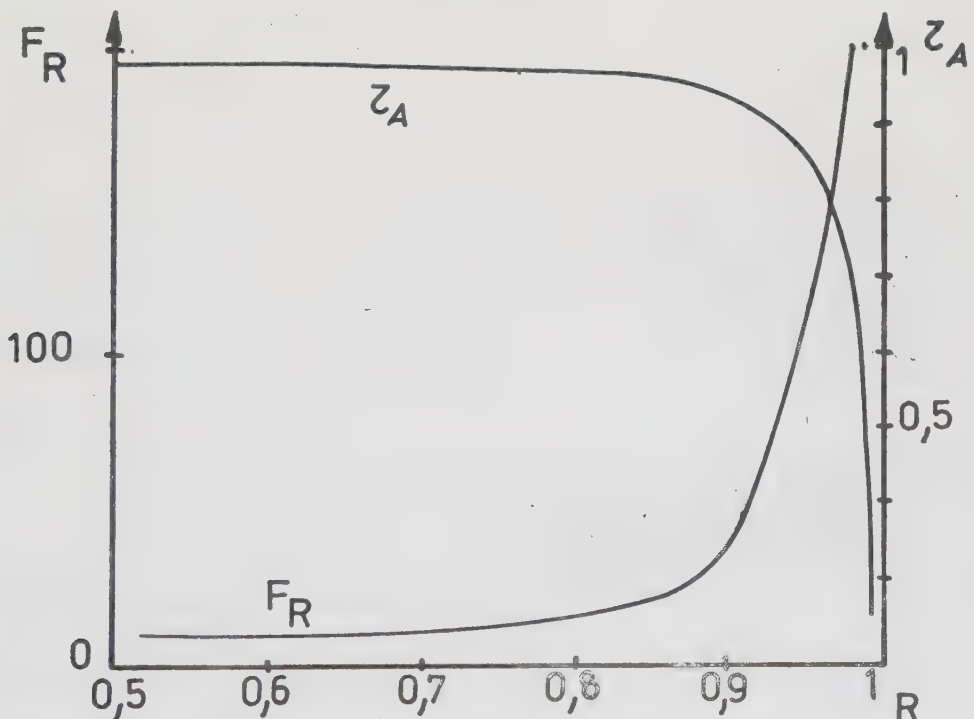


Figure 10 | Variation de la transmission et de la finesse d'un étalon parfait en fonction de la réflectivité des miroirs.

Nous devons maintenant définir un paramètre essentiel de l'interféromètre qui est le contraste, c'est-à-dire le rapport entre la transmission maximum et la transmission minimum d'une raie monochromatique. Nous

calculerons d'abord le contraste réflecteur C_R qui est égal à :

$$C_R = \frac{4R}{(1-R)^2} + 1 \quad (83)$$

ce qui pour des valeurs élevées de R ($\sim 0,9$) peut s'exprimer uniquement en fonction de la finesse réflectrice F_R , comme :

$$C_R = \frac{4F_R^2}{\pi^2} \quad (84)$$

On s'aperçoit alors d'après l'expression de la fonction d'Airy qu'un interféromètre de Fabry-Perot est, en ce qui concerne la recherche de raies faibles en présence de raies intenses, limité par la valeur de son contraste, c'est-à-dire que la finesse devra être assez grande et, en conséquence, cela se traduira par une chute de la transmission, d'où une plus grande difficulté pour détecter la raie peu intense. On est ici devant une des limites à l'emploi du Fabry-Perot.

L'autre limite principale tient à la finesse, car il est bien évident que le pouvoir de résolution d'un interféromètre F.P.P. est très intimement lié à la définition même de la finesse.

On constate que pour un Fabry-Pérot idéal, on n'a jamais intérêt à augmenter la résolution en dessus de ce qui est nécessaire pour l'expérience souhaitée car alors cela se traduit par une baisse considérable de la transparence de l'instrument.

III.2.2.3 - Influence des défauts dont peut souffrir un F.P.P. réel.

Ainsi que l'a montré CHABBAL⁽¹⁸⁾, on peut considérer un F.P.P. réel comme la convolution d'un F.P.P. idéal et de certains défauts, le plus important étant certainement le défaut de planéité des miroirs. Nous nous bornerons à citer les résultats obtenus par cet auteur.

La fonction d'appareil d'un étalon réel peut être décrite comme le produit de convolution de la fonction d'Airy (78) par une fonction de défaut D dont la forme dépend de la nature de ces défauts ; soit E la fonction d'appareil de l'étalon réel, on note alors :

$$E = \mathcal{H} * D \quad (85)$$

Dans le cas d'un défaut de parallélisme dû à une courbure sphérique des miroirs, la fonction défaut a une allure rectangulaire ; tandis que dans le cas d'un micropoli défectueux, la fonction défaut a une forme gaussienne ; on considère alors l'étalon réel comme formé d'une multitude de petits étalons dont l'écartement des faces serait variable, mais de valeur centrée sur l'intervalle réel des miroirs du Fabry-Perot.

Il résulte de la convolution (85) que la fonction d'appareil E présente des pics plus larges que ceux de la fonction d'Airy ; cela peut se traduire à l'aide d'un coefficient de finesse globale F moins élevé que le coefficient de finesse réflectrice et par l'existence d'une finesse limite F_D qui serait reliée directement à la largeur d'un pic de la fonction E si la largeur des pics de la fonction d'Airy tendait vers zéro. Cela entraîne également que la largeur d'un pic de la fonction d'appareil est supérieure à la largeur d'un pic de $\mathcal{H}$ et à la largeur de D mais inférieure ou égale à la somme des deux largeurs.

La figure 11 représente la variation des supports F/F_D et F/F_R en fonction de F_R/F_D et cela pour les cas où D est une fonction rectangulaire notée R ou une gaussienne notée G .

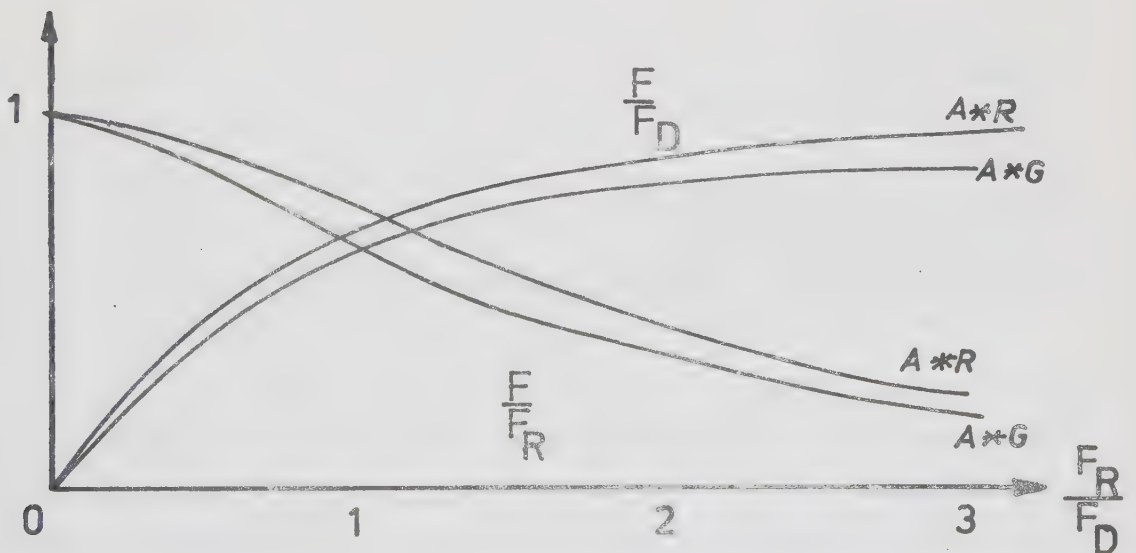


Figure 11 | Variations des rapports de la finesse globale sur la finesse limite, ou la finesse réflectrice en fonction du rapport de ces deux dernières.

Il est intéressant d'obtenir une valeur du coefficient de finesse limite en fonction d'une évaluation des défauts de la lame réfléchissante, Chabbal a montré que pour :

- un défaut dû à une courbure sphérique à λ/P , $F_D = P/2$ (P est un entier),
- un défaut de réglage de λ/P : $F_D = P/2$,
- un défaut de micropoli de λ/P : $F_D = P/4,7$.

Enfin, signalons que de tels défauts ont une influence néfaste sur la transmission d'un F.P.P. et cela d'autant plus que le rapport F_R/F_D est élevé ; il en résulte que la transmission de l'interféromètre réelle est obtenue par le produit de τ_A par τ_E qui est un facteur inférieur à 1 et qui décroît quand le rapport F_R/F_D augmente ; de même ce facteur altère le contraste réel de l'interféromètre puisque le contraste réflecteur est également multiplié par ce facteur pour donner la valeur du contraste réel.

III.2.2.4 - Système explorateur.

Pour transformer un interféromètre en spectromètre, il est nécessaire de lui associer un système explorateur qui permette de mesurer l'intensité lumineuse transportée à chaque fréquence. Pour ce faire, on doit faire défiler successivement les radiations des diverses fréquences devant un récepteur photosensible ; cette transformation de l'information optique en signal électrique permettra l'obtention d'une forme graphique du spectre lumineux.

Tout le spectre étant contenu dans l'image des anneaux formée par l'objectif, il est nécessaire de choisir une partie de cette image de telle façon que cette région ne corresponde qu'à une seule fréquence ; il semble donc intéressant d'utiliser un diaphragme annulaire pour recueillir la lumière d'un anneau entier. D'autre part, comme la densité spatiale des anneaux augmente avec la distance des anneaux du centre, il faudra, pour une bonne résolution, se placer près du centre des anneaux là où la dispersion est maximum.

Plusieurs procédés sont possibles pour faire défiler les fréquences devant l'ouverture du diaphragme : soit faire varier le diaphragme annulaire sans changer l'image des anneaux, soit faire défiler les

anneaux devant un diaphragme fixe ; cette dernière méthode étant la plus employée.

Envisageons d'abord l'influence d'un diaphragme annulaire de largeur non nulle sur la fonction d'appareil du spectromètre.

On peut caractériser la largeur du diaphragme par sa largeur angulaire δi ; c'est-à-dire les différents angles sous lesquels le diaphragme laisse passer la lumière ; on définit alors une fonction de diaphragme $F(i)$, telle que :

$$i_0 - \frac{\delta i}{2} < i < i_0 + \frac{\delta i}{2} \text{ entraîne } F(i) = 1$$

$$i \text{ extérieur à cet intervalle entraîne } F(i) = 0$$

A cette largeur angulaire correspond une largeur en fréquence de la fonction F , en effet si on considère l'angle solide $\delta\omega$ sous lequel on voit l'ouverture du diaphragme depuis le centre de l'objectif, on a :

$$\delta\omega = 2\pi \frac{\delta\sigma}{\sigma} \quad (86)$$

D'où la largeur de la fonction $F(\sigma)$ est égale à $\frac{\sigma\delta i^2}{2}$ et qu'on choisit en général égale à la largeur d'un pic de $\mathcal{H}(\sigma)$.

La fonction d'appareil du spectromètre $W(\sigma)$ peut s'écrire en fonction de la fonction d'appareil de l'interféromètre et de $F(\sigma)$ ⁽¹⁹⁾, on obtient :

$$W(\sigma) = \mathcal{H} * D * F \quad (87)$$

Le diaphragme le plus commode d'emploi et, par là, le plus souvent usité est le "trou d'épingle", c'est-à-dire un trou circulaire placé au centre de la figure d'interférence. La figure 12 représente la position du "trou d'épingle" et la forme de $F(\sigma)$.

On voit, que pour ne pas élargir la fonction de l'étalon $\mathcal{H} * D$, on aurait intérêt à réduire au maximum le rayon angulaire de l'ouverture du diaphragme ; mais cela n'est possible qu'au prix d'une chute de la luminosité du spectromètre. En effet, si on exprime par τ_F le coefficient de transparence du diaphragme défini par le rapport entre le flux

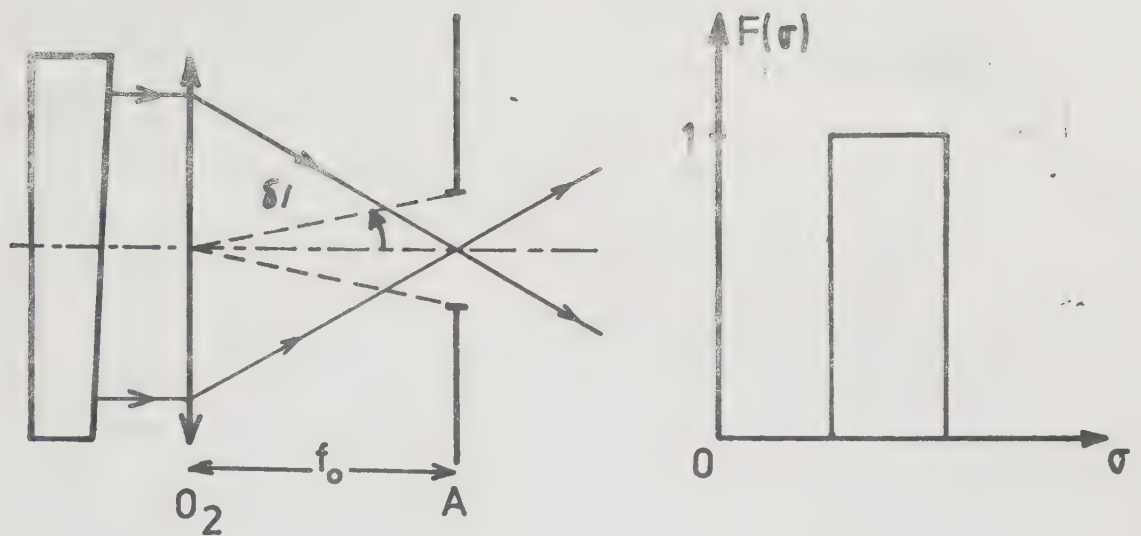


Figure 12 | a) Ouverture angulaire du "trou d'épingle" ;
 f_0 : distance focale de O.
 b) Fonction $F(\sigma)$ du "trou d'épingle".

lumineux transmis par le trou d'épingle et le flux à la sortie de l'étalon ; la transparence globale du spectromètre sera donc :

$$\tau = \tau_A \tau_E \tau_F \quad (88)$$

et celle-ci dépendra beaucoup de τ_F qui est proportionnelle à $\delta\omega$ l'angle solide de sortie des rayons lumineux du spectromètre.

Mais il ne suffit pas de posséder un moyen de sélectionner une fréquence ou un ensemble de fréquences ; il est nécessaire de pouvoir les faire défiler devant le diaphragme ; pour cela, deux types de solutions sont envisageables :

- déplacer un des deux miroirs,
- ou changer l'indice du milieu qui occupe l'espace entre les miroirs.

La deuxième solution nécessite une enceinte étanche en pression où on place l'interféromètre, et on fait varier linéairement la pression d'un gaz dans cette enceinte⁽²⁰⁾, ce qui a pour effet de changer l'indice par exemple pour l'azote $\delta n / \delta P = 3.10^{-4} \text{ at.m}^{-1}$.

La première solution a été employée avec différents mouvements : à cannes (21), à ressorts (22), à cristaux piézoélectriques (23), et même thermique par dilatation d'un disque de silice fondue revêtu sur ses deux faces de couches multidiélectriques (24).

Les qualités d'un dispositif de balayage doivent être la linéarité, la souplesse d'emploi et, si possible, la simplicité de mise en oeuvre.

Il est en effet primordial de pouvoir faire varier le temps de balayage ; car moins les échantillons diffusent et plus le temps d'enregistrement devra être long, alors que pour les réglages préliminaires, il est très intéressant d'avoir un balayage très rapide pour visualiser les signaux délivrés par le photomultiplicateur sur un oscilloscope.

Sous réserve de trouver des cristaux piézoélectriques de déformation suffisamment linéaire, la solution piézoélectrique du point de vue souplesse d'emploi est très séduisante.

C'est en essayant de tenir compte de tous ces impératifs que nous avons choisi l'appareillage suivant.

III.2.2.5 - Interféromètre choisi.

C'est un appareillage commercialisé par la Firme TROPEL (U.S.A.), sous la dénomination 350 F.P. Il est constitué d'un châssis formé de plaques de fonte de 2 cm d'épaisseur appuyées sur 3 cylindres massifs d'invar de 2,5 cm de diamètre. Sur une des plaques repose, par l'intermédiaire de 3 butées micrométriques, le premier miroir sur son porte-miroir, et un étrier mobile coulissant sur les 3 barres d'invar permet de régler la distance entre le premier miroir et le miroir solidaire de l'étrier ; cette distance varie de 0 à 120 mm. Le second miroir est solidaire de l'étrier par l'intermédiaire de 3 céramiques piézoélectriques cylindriques. Une règle graduée et un vernier permettent de connaître la distance entre les miroirs à 1/50 de mm, et à la sortie du châssis peut être fixé un collimateur et le "trou d'épingle".

Les miroirs d'un diamètre de 52 mm sont en silice fondue et revêtus de couches multidiélectriques dont le pouvoir réflecteur est 98 % comme on peut le déduire d'après les données de la figure 13 et en admettant le coefficient d'absorption indiqué par le constructeur $A=0,25 \%$.

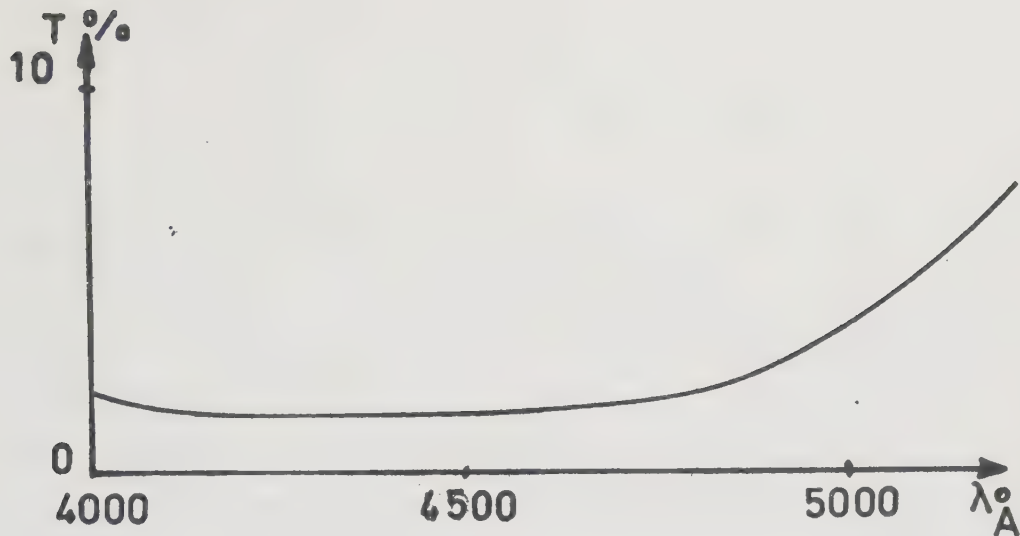


Figure 13 | Variation de la transmission d'un miroir en fonction de la longueur d'onde.

De plus, ces miroirs sont donnés pour une planéité de $\lambda/200$ sur toute la surface, mais qui peut être meilleure que $\lambda/600$ pour une ouverture de 3 mm.

On obtient donc pour le Fabry-Perot utilisé le tableau de caractéristiques suivantes :

: R :	: A :	: F_R :	: C_R :	: τ_A :	: F_D :	: τ_E :	: F :	: C :
: 0,98 :	: 0,0025 :	: 150 :	: 10 000 :	: 0,77 :	: 100 :	: 0,65 :	: 86 :	: 6 500 :
: :	: :	: :	: :	: :	: :	: *	: :	: :

* Pour une ouverture maximum et, en supposant un défaut de planéité ayant la forme de courbure sphérique.-

Les céramiques piézoélectriques qui assurent le balayage donnent un déplacement total de $1,2 \mu$ pour 700 V et sont pilotées par un générateur de rampe 351 TROPEL qui délivre des rampes d'amplitude et de période répétitive variables. L'amplitude va jusqu'à 700 V, la période varie de 50 ms à 1000 s et la linéarité de ces rampes est donnée comme meilleure que 0,5 % entre les premiers et les derniers 10 % de la rampe.

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

101

III.2.3 - Système optique utilisé.

III.2.3.1 - Source lumineuse.

La source de lumière est un laser à Helium-Cadmium, commercialisé par SPECTRA-PHYSICS. Ce laser délivre une puissance de 50 mW à une longueur d'onde de $4416 \text{ \AA}$. Cette puissance est répartie sur une trentaine de modes axiaux, dont l'écart en fréquence est de 85 MHz. Comme la largeur spectrale de l'ensemble des modes axiaux est du même ordre de grandeur que le décalage des raies Brillouin, il est nécessaire de ne travailler qu'avec un mode axial sélectionné dans la cavité d'extension du laser à l'aide d'un étalon interférentiel ; mais cela réduit la puissance lumineuse à environ 15 mW, ce qui est une diminution très sensible et une source de difficultés expérimentales. Une autre cause de difficultés est la mauvaise stabilité en fréquence qui se manifeste sous deux formes : une dérive lente du mode axial suivi de l'apparition d'un autre mode axial situé à environ 4 GHz et dont l'intensité croît progressivement jusqu'à supplanter le premier mode qui s'affaiblit et disparaît totalement.

Il semble probable que ces variations de fréquence sont dues à des variations de température qui entraînent des dilatations de l'étalon et du tube laser ; mais, du fait de l'impédance thermique qui existe entre ces deux éléments et l'extérieur, aucun lien direct entre une dérive et une variation simultanée de la température n'a pu être observé. Nous avons constaté des dérives atteignant une valeur moyenne de 10 GHz par heure, mais après avoir thermostaté la salle de manipulation à un degré près, cette dérive semble avoir sensiblement diminuée et on a même pu constater des périodes d'environ une demi-heure où la fréquence ne dérivait pas sensiblement.

Toutefois, ces mesures n'ont qu'un caractère qualitatif, car elles sont réalisées à l'aide d'appareils susceptibles, eux aussi, de dériver ; l'appareillage utilisé étant constitué d'un analyseur de spectre Spectra-Physics qui comprend un interféromètre de Fabry-Pérot confocal à balayage piézoélectrique, suivi d'une cellule photoélectrique et cet ensemble est relié à un tiroir Spectra-Physics, enfiché dans un oscilloscope Tektronix 564 B.

L'utilité de ce contrôle n'est pas tant la mesure de la dérive que la vérification qu'il n'existe pas deux modes simultanés dans l'émission du laser doté d'un étalon quand on réalise une expérience de diffusion Brillouin.

III.2.3.2 - Optique d'entrée.

Ayant de pénétrer dans l'échantillon, le faisceau laser est focalisé par une lentille de distance focale 15 cm, ce qui donne dans le plan focal de cette lentille un cercle d'un diamètre évalué à 0,1 mm.

Il est également possible de changer la polarisation de la lumière dans une direction quelconque à l'aide d'une lame demi-onde située entre le miroir de renvoi et l'échantillon.

Lors de la traversée de l'échantillon par la lumière, le flux diffusé à 90° est collecté par une lentille plan convexe d'ouverture $f/8$ disposée de telle façon que le faisceau incident soit dans le plan focal objet de cette lentille ; cette condition réalisée permet de diriger un faisceau de lumière parallèle sur les miroirs du Fabry-Pérot, tandis qu'un iris d'entrée permet de réduire l'entrée à une ouverture de $f/30$.

Il est intéressant de noter que la valeur de l'ouverture influe sur la forme du spectre ; en effet, si une grande ouverture permet une meilleure collection de la lumière, en revanche elle élargit les raies Brillouin suivant un mécanisme qu'a expliqué YEH⁽²⁵⁾. Cet effet tient à ce que la lumière est collectée sous un angle non nul et mélange des photons de vecteur d'onde $\vec{k}'$ mais aussi ceux possédant un vecteur d'onde compris dans un cône d'axe $\vec{k}$ et qui s'appuie sur le contour de la lentille. La figure 14a représente la géométrie de diffusion pour une ouverture de rayon angulaire δ et la figure 14b l'élargissement des raies Brillouin dû à cet effet, en fonction du rapport du rayon angulaire à l'angle de diffusion pour un milieu isotrope.

Il est à noter que si l'échantillon est anisotrope, l'effet d'une ouverture finie peut également se traduire par une dissymétrie des raies Brillouin.

III.2.3.3 - Optique de sortie et étendue du montage.

L'optique de sortie se compose d'un collimateur et d'un filtre spatial commercialisés par TROPEL ; l'objectif est réalisé par un achromat d'une focale de 20 cm ; dans le plan focal image de cet objectif est placé

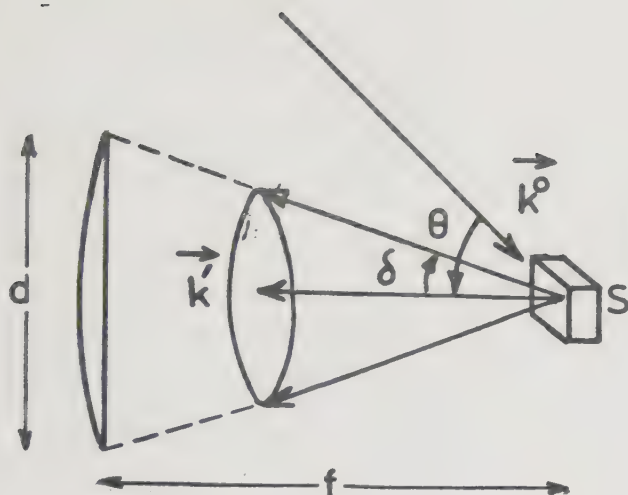


Figure 14a | Cône des phonons acceptés par le Fabry-Pérot.

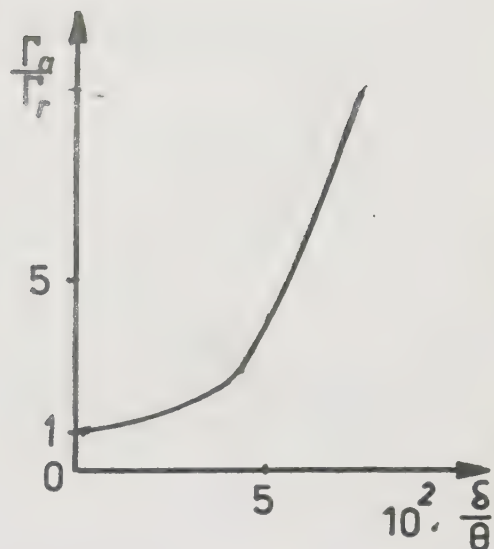


Figure 14b | Elargissement des raies Brillouin rapporté au rapport δ/θ .

le trou d'épingle dont le diamètre a une valeur choisie suivant la résolution désirée ; enfin, ce trou d'épingle est situé dans le plan focal image de l'oculaire ; ce dispositif afocal produit, aux effets de diffraction près, un faisceau lumineux parallèle dont le diamètre est environ 1 mm.

Comme les miroirs du Fabry-Pérot ne sont pas traités pour le rouge, ils laissent passer la fluorescence du tube laser et, de plus, les raies Raman de l'échantillon se superposant aux raies Brillouin et à la fluorescence du tube, il est donc nécessaire d'utiliser un filtre à bande étroite centré sur la raie laser.

Pour réaliser le meilleur compromis, nous avons choisi un filtre interférentiel de transmission $T = 0,55$ et de demi-largeur à mi-hauteur égale à $6 \text{ \AA}$ (34 cm^{-1}), ce qui permet d'éliminer les raies Raman dans la majorité des cas.

Enfin, une fois filtré, le pinceau lumineux devenu monochromatique est dirigé sur la photocathode du photomultiplicateur.

III.2.3.4 - Etendue du spectromètre.

Il est intéressant de connaître une évaluation de cette grandeur car elle est reliée directement à la luminosité de l'instrument.

Notons L la luminance de la source, Φ le flux transmis par le filtre spatial et U l'étendue de l'instrument qui est égale au produit de la surface utile de l'objectif par la valeur de l'angle solide sous lequel on voit le trou d'épingle depuis le centre de l'objectif ; la figure 15 donne le schéma de l'optique de sortie ; on a alors :

$$\Phi = L \tau U \quad (89)$$

où $\tau = \tau_E \tau_A$, tels qu'ils ont été définis au paragraphe II.2.2.2 et II.2.2.3.

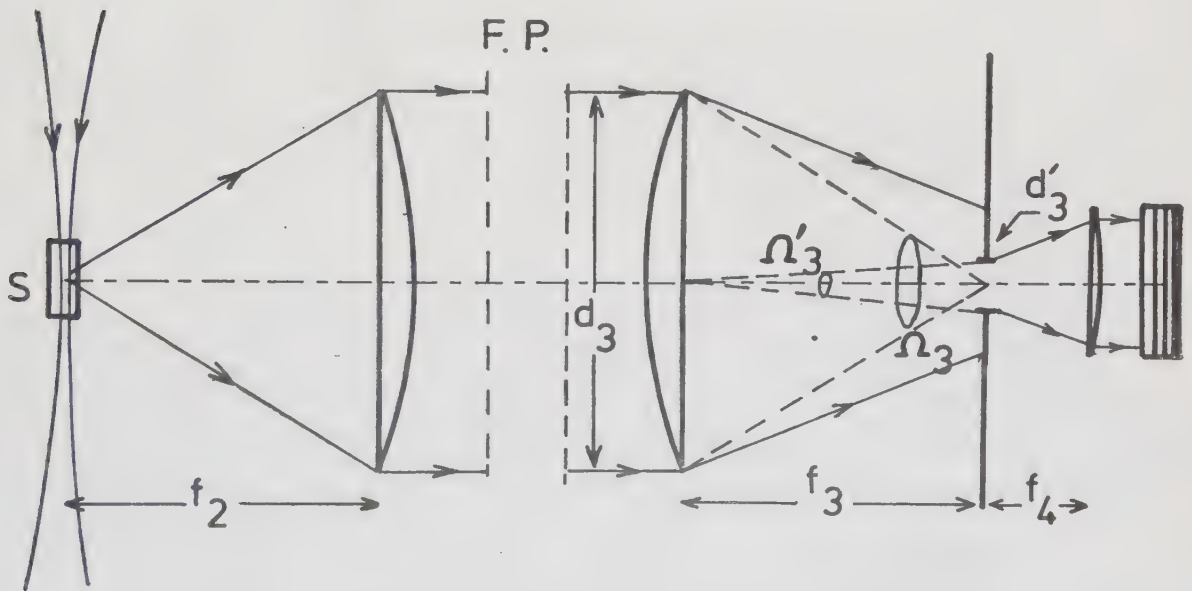


Figure 15 | Schéma optique de la sortie des rayons lumineux. Les lettres f et d désignent les distances focales et les diamètres et Ω les angles solides.

Calculons l'étendue : $U = \pi \frac{d_3^2}{4} \Omega_3' = \pi \frac{d_3'^2}{4} \Omega_3$ et comme nous sommes dans le cas d'ouvertures faibles, on peut écrire :

$$U \approx \frac{\pi^2}{16} \frac{d_3^2}{f_3^2} d_3'^2 \quad (90)$$

Sachant que le diamètre utile de l'objectif est de 50 mm et que le diamètre du trou d'épingle utilisé est de 50 μm on trouve pour l'étendue une valeur de $U = 10^{-10} \text{ m}^2$.

On peut en déduire la valeur de la luminosité maximum de l'appareillage, en tenant compte de la transmission du filtre τ_F :

$$\mathcal{L} = \frac{\phi}{L} = \tau_E \tau_A \tau_F U \approx 3 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2 \quad (91)$$

Mais cette valeur peut être réduite, en diminuant l'ouverture de l'iris d'entrée, ce qui a pour effet de limiter le diamètre utile de l'objectif.

III.2.4 - Systèmes de détection utilisés.

III.2.4.1 - Le photomultiplicateur.

Compte tenu des caractéristiques de la diffusion Brillouin, et en particulier du peu de lumière diffusée par les solides et des difficultés d'augmenter l'ouverture du spectromètre, notre choix a dû se porter sur un P.M. à faible bruit et de gain relativement élevé (13 dynodes vénitiennes aveugles).

A cet effet, nous avons choisi le EMI 9789 B pour son rendement quantique de 20 % à la longueur d'onde qui nous intéresse (cathode S 11) et pour son faible bruit de fond. Nous avons mesuré 30 impulsions par seconde à la température ambiante pour une tension d'alimentation de 900 V après avoir pris soin d'utiliser une embase blindée électrostatiquement et magnétostatiquement.

Dans le but de pouvoir faire du comptage photonique, ce P.M. a été monté sur un pont diviseur à impulsions.

III.2.4.2 - Cas des grosses intensités - Détection continue.

Dans le cas d'échantillons diffusant fortement la lumière pour la plupart des liquides, nous avons branché à la sortie du P.M. une cellule R C intégratrice et choisie de telle façon que sa constante de temps soit

faible comparé au temps nécessaire à balayer un élément spectral ; cet élément spectral étant défini comme le rapport de l'intervalle spectral libre sur la finesse réelle du spectromètre.

Dans le cas le plus courant, nous faisons défiler une rampe de 750 V en 1 000 s, ce qui produit le balayage de 6 intervalles libres et en supposant une finesse maximum de 100, la constante de temps doit être très inférieure à 2 s ; d'autre part, afin d'obtenir une tension suffisante pour attaquer l'enregistreur MECI SPEEDOVAX, il fallait une résistance d'environ 80 k Ω ; d'où une valeur de la capacité de l'ordre de 220 n F.

III.2.4.3 - Cas des faibles intensités.

Les échantillons délivrant peu de lumière, tels que les solides et certains liquides, peu diffusants, nous ont obligé à une détection type "shot noise"⁽²⁶⁾, dont le schéma synoptique apparaît figure 16.

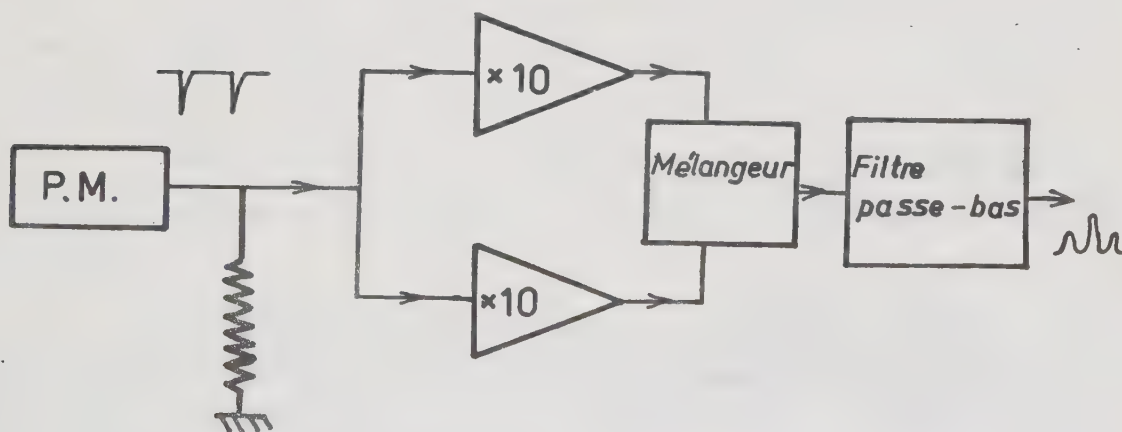


Figure 16 | Détection type "shot-noise" (27).

Le principe de cette détection réside sur le fait que dans le cas de flux lumineux très faibles, il y a plus d'énergie dans la partie alternative du signal d'un P.M. que dans la partie continue.

On utilise alors les impulsions comme partie alternative du signal. Ces impulsions traversent une résistance reliée à la masse ce qui développe une tension à l'entrée des deux préamplificateurs ; ensuite

les deux signaux se présentent aux deux entrées d'un multiplicateur à anneau de diodes qui joue le rôle d'un corrélateur ; enfin, le signal attaque l'enregistreur par l'intermédiaire d'une cellule R-C intégratrice qui ne laisse passer que les variations les plus lentes.

Les préamplificateurs utilisés sont des ORTEC 109 A, le mélangeur un RELCOM MIXER M.1.C.

Dans tous les cas : faibles ou fortes intensités, ces deux systèmes demandent un défilement lent du spectre et ne peuvent indiquer si des variations de fréquence du laser ont eu lieu, ce que permet le mode d'enregistrement suivant.

III.2.4.4 - Enregistrement à l'aide d'un analyseur multi-échelle.

Pour être certain d'enregistrer un spectre correct, il est indispensable que l'enregistrement se fasse en un temps très court par rapport au temps où la dérive du laser devient appréciable ; dans les systèmes décrits aux paragraphes précédents, ce n'est jamais le cas, le temps de défilement d'un spectre étant typiquement de 1 000 s à 600 s ; c'est le temps nécessaire pour recevoir en chaque point du spectre un nombre important d'impulsions pour les intégrer.

Aussi, avons-nous été amenés à utiliser un analyseur multicanaux fonctionnant en multiéchelle, le ZOOMAX fabriqué par la Société S.E.I.N.

Un tel appareil est constitué d'une mémoire formée de 1 024 canaux balayés séquentiellement en un temps variable de 100 μ s à 65 535 s par canal, les impulsions du P.M. sont amplifiées et, pendant le temps de balayage du canal, sont comptés, puis leur nombre est mis en mémoire dans ce canal et, à la fin du balayage, le fonctionnement est arrêté jusqu'à ce qu'une impulsion coïncidant avec le début de la rampe appliquée aux cristaux piézoélectriques déclenche un nouveau balayage.

Il est alors possible, après environ 20 s, d'avoir un spectre d'un liquide ; et on peut être certain que la dérive du laser n'a pas modifié ce spectre. Mais pour les corps diffusant peu, il est nécessaire d'augmenter le temps d'accumulation et malgré tout, on peut savoir si

l'appareillage dérive car cela se traduit par un élargissement des raies ; il semble même qu'il soit possible d'éliminer cette dérive en asservissant le départ du balayage au passage d'une raie caractéristique devant le P.M.

De toute façon, les passages multiples améliorent le rapport signal/bruit qui est multiplié par $\sqrt{N}$ si on réalise N balayages ; cette amélioration n'est sensible que si l'appareillage ne dérive pas trop.

A cet effet, nous venons de réaliser une synchronisation du balayage sur le signal dont le schéma est représenté ci-dessous.

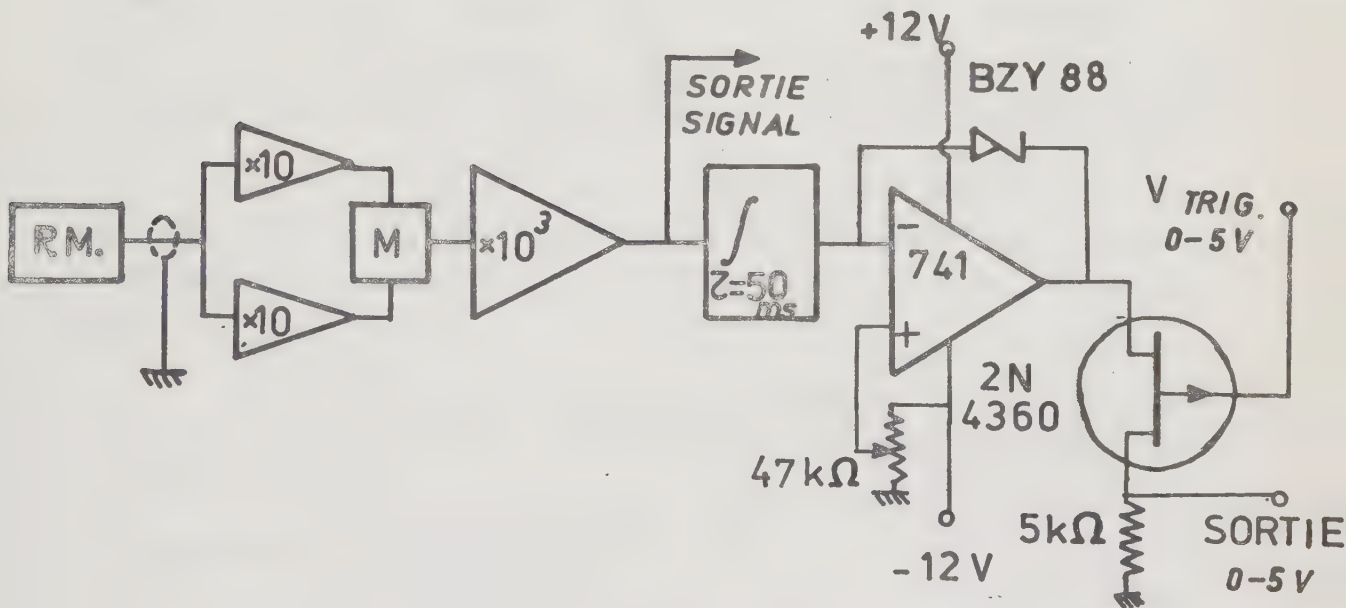


Figure 17 | Schéma de la synchronisation.

Pour obtenir le signal nécessaire au déclenchement du balayage 2,5 V pendant au moins 50 μ S, il existait au moins deux solutions : soit un signal fourni par une échelle de comptage qui déclencherait l'analyseur au passage d'un grand nombre d'impulsions, soit le signal fourni par un intégrateur, comme nous disposions d'un intégrateur nous avons choisi cette solution comme étant la plus économique.

Ce système fonctionne de façon classique, c'est-à-dire que le signal est préamplifié comme au paragraphe II.2.4.3, puis amplifié à 60 dB par un ampli MAPII ; une sortie de cet amplificateur produit des impulsions positives qui sont dirigées sur l'entrée signal de l'analyseur alors que

l'autre sortie fournit des impulsions négatives à l'entrée de l'intégrateur MILI11. Cet intégrateur a été modifié pour obtenir une constante de temps d'intégration de 50 ms ; cet appareil délivre à sa sortie une tension négative 0-10 V proportionnelle au nombre d'impulsions qui lui sont appliquées à l'entrée.

Cette tension de sortie attaque un comparateur de tension essentiellement constitué d'un amplificateur opérationnel 741 dont la tension de sortie est limitée par une diode Zener BZY 88 C5 V6. Le comparateur de tension ainsi que l'amplificateur MAPII et l'intégrateur sont alimentés par une baie RENATRON.

La tension appliquée à l'autre entrée du comparateur est une tension négative dont la valeur est choisie à l'aide d'un potentiomètre.

La tension de sortie du comparateur est appliquée à une base d'un FET 2 N 4360 dont la gachette est commandée par une sortie logique du générateur de rampe 351 afin d'éliminer les impulsions provenant du retour de spectre.

Le signal alors disponible à l'autre base du FET étant appliqué sur l'entrée START du multiéchelle dont l'impédance est $6k\Omega$.

La figure 18 (page suivante) montre la variation de toutes ces tensions et le signal de sortie.

L'amélioration consécutive à l'emploi d'un tel dispositif est assez considérable ; en effet, la figure 19 montre deux spectres enregistrés dans des conditions similaires l'un sans la synchronisation décrite précédemment (fig. 19 a), l'autre avec le dispositif.

Les résultats visibles sur la fig. 19 b sont reproductibles et montrent qu'on peut alors travailler avec des temps d'accumulation relativement long, tout en éliminant la dérive du laser. Il est même possible alors d'éliminer le mode parasite du laser en arrêtant l'accumulation dès que celui-ci apparaît sur l'oscilloscope, puis en changeant le réglage de l'étalon intracavité pour n'avoir qu'un seul mode, puis en recommençant l'accumulation ; on constate alors que les spectres s'ajoutent bien les uns aux autres sans produire un dédoublement du spectre comme c'est le cas sans synchronisation.

Signaux délivrés

par :

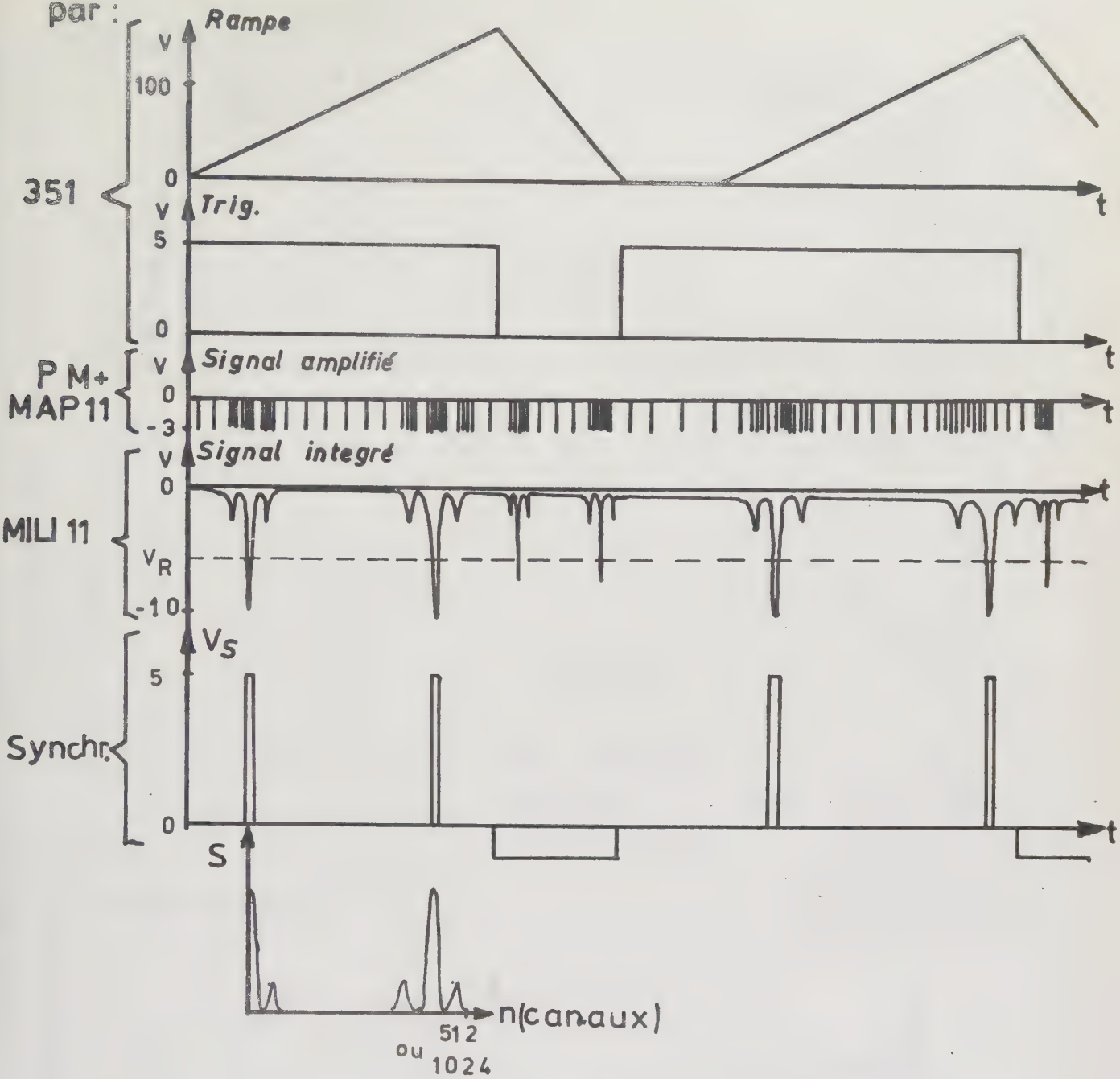


Figure 18 | Signaux nécessaires à la synchronisation et signal de sortie.

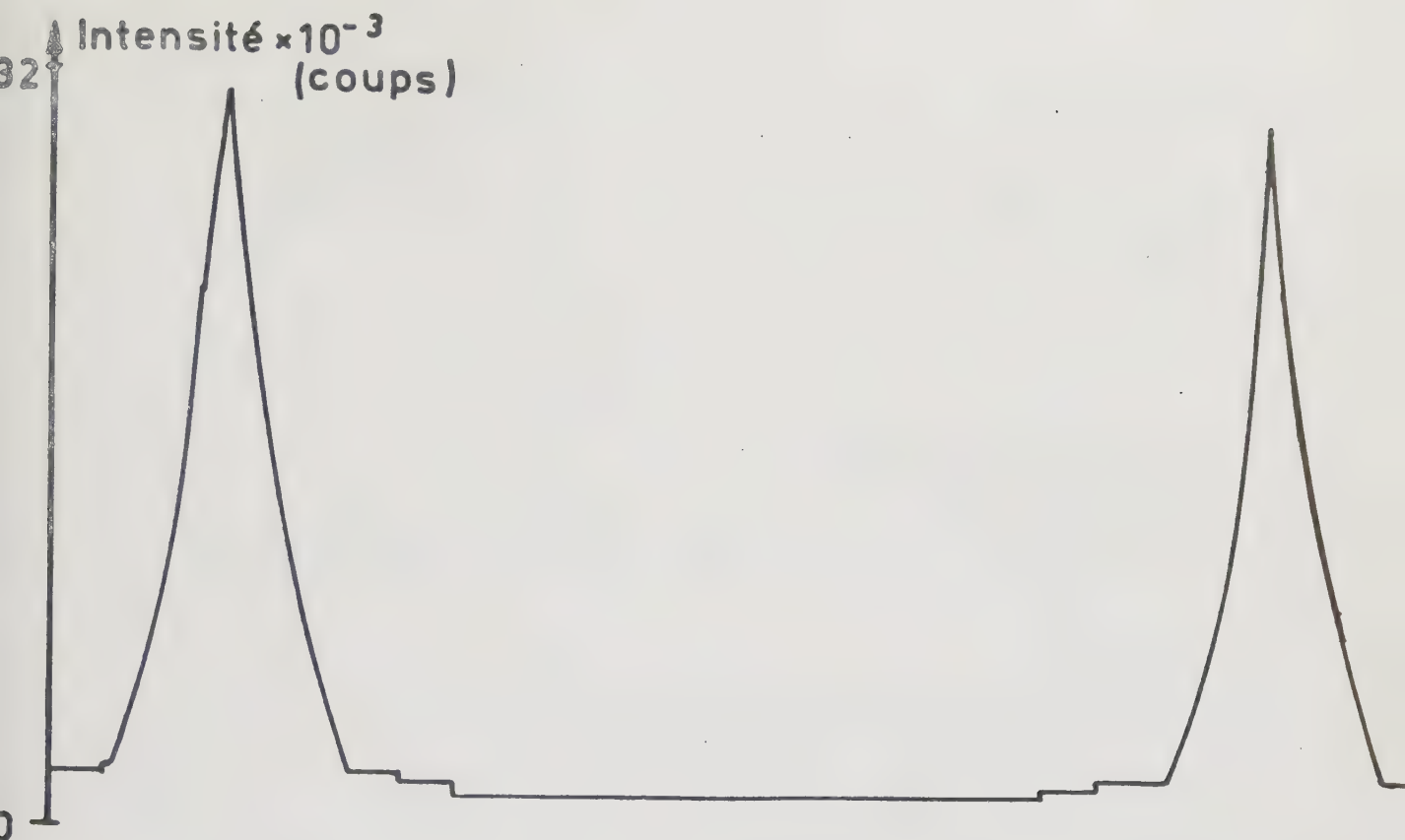


Figure 19 a | Spectre enregistré en 500×5 s sans synchronisation en présence d'une dérive laser peu importante.

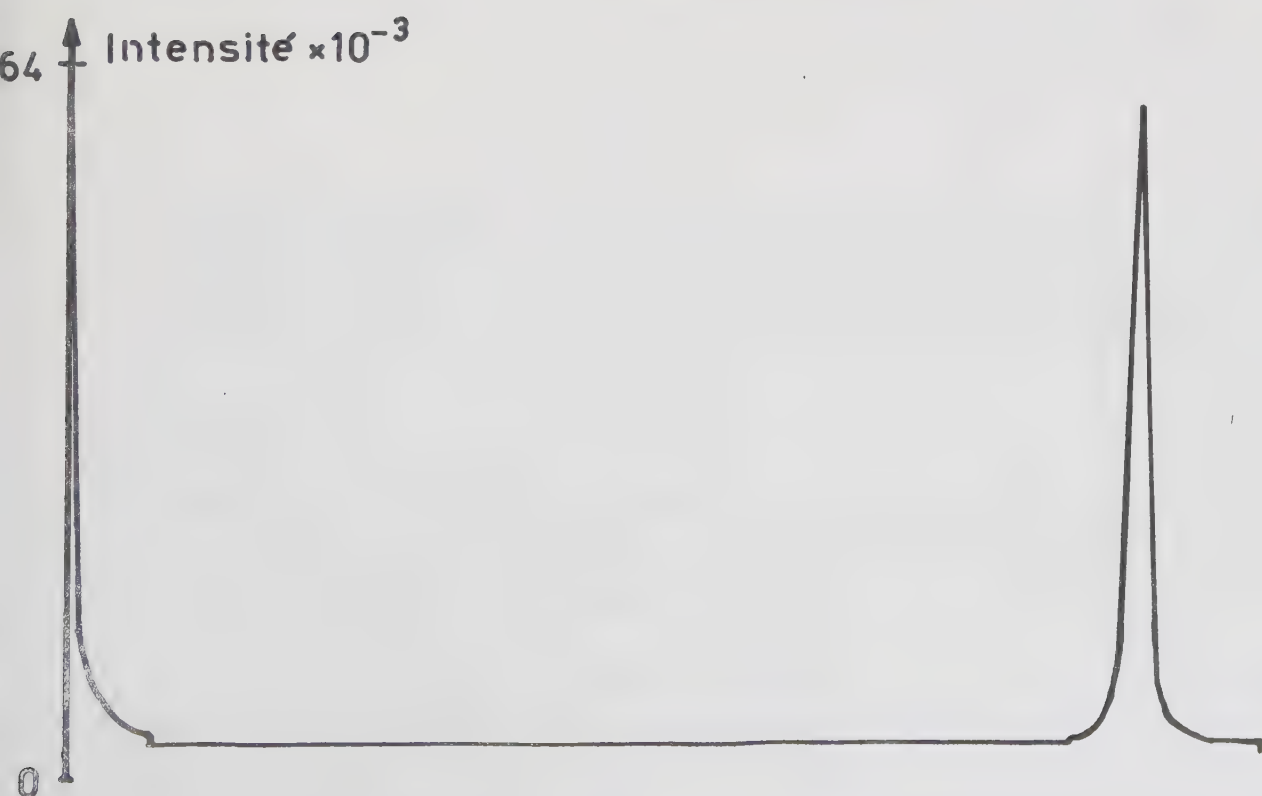


Figure 19 b | Spectre enregistré en 500×5 s avec synchronisation.

III.3 - Correction des non linéarités du défilement des fréquences.

Nous nous sommes aperçus que l'enregistrement d'un spectre de plusieurs ordres ne donnait pas des résultats identiques pour tous les ordres ; cela était également vrai dans les différents cas d'enregistrement : pour un enregistrement en 1 000 s sur l'enregistreur X(t) MECI ou sur le X-Y MECI mais également pour un spectre enregistré sur analyseur multicanaux, ce dernier étant réalisé en une dizaine de secondes cela excluait dans ce cas l'action de la dérive du laser ; aussi avons-nous été amenés à penser que ces différences pouvaient être dues à un comportement non linéaire des céramiques piézoélectriques.

III.3.1 - Correction à la mesure de l'écart en fréquence entre deux raies.

Lors d'un balayage en fréquence du spectromètre, la tension V appliquée aux céramiques piézoélectriques varie linéairement en fonction du temps ; c'est aussi vrai pour le défilement du papier sur l'enregistreur X(t) et pour le balayage des canaux sur l'analyseur multicanaux ; il existe donc une relation de proportionnalité entre la tension appliquée et la longueur de papier déroulé ou le nombre de canaux balayés.

$$V = k \ell \quad (92)$$

Mais quand on change d'ordre dans la figure d'interférence, l'écartement des miroirs a varié de $\lambda/2$ et la fréquence a changé d'un intervalle spectral libre Δ ; donc, pour un déplacement x, la variation de fréquence sera :

$$\Delta f = \frac{2x\Delta}{\lambda} \quad (93)$$

Comme on a vu sur un enregistrement (fig. 17) que l'intervalle entre ordres mesuré sur le papier diminuait quand la tension augmentait, on peut écrire en première approximation que :

$$x = \alpha V + \beta V^2 \quad (94)$$

où α et β sont des paramètres positifs et où x traduit l'élongation de la céramique piézoélectrique quand on lui applique une tension V .

On peut alors écrire la relation qui existe entre 2 raies A et B distantes de l'origine du spectre de ℓ_A et ℓ_B .

$$\Delta f_{AB} = \int_A^B df = \frac{2\Delta}{\lambda} \int_{\ell_A}^{\ell_B} dx$$

$$\Delta f_{AB} = \frac{2\Delta}{\lambda} k |\ell_A - \ell_B| \left[\alpha + \beta k (\ell_A + \ell_B) \right] \quad (95)$$

Cette formule fait apparaître plusieurs paramètres inconnus, tels que α et β ; k peut être connu, mais seulement avec une précision de 5 % car c'est la précision d'une sortie annexe donnant une tension $V/100$, Δ est connu d'après la mesure directe de l'espace entre les deux miroirs avec une incertitude de l'ordre de 1 % malgré la présence d'une règle avec vernier au 1/100^e de mm, mais comme le miroir pris comme origine peut être déplacé indépendamment de la règle, c'est assez illusoire, il semble donc préférable d'étalonner le spectromètre d'après une raie Brillouin bien connue.

III.3.1.1 - Détermination directe des paramètres α et β .

D'après la fig. 20, on a calculé les valeurs de $\frac{\Delta x}{\Delta V}$ pour les valeurs de la tension correspondant au milieu d'un inter-ordre et de même pour $\frac{d^2x}{dV^2}$, ce qui a donné les résultats suivants :

V_{Volts}	100	160	220	280	340	400	460	520	640
$\frac{\Delta x}{\Delta V} 10^3$ $\mu m/v$	1,729		1,785		1,836		1,912		1,961
$10^7 \frac{d^2x}{dV^2}$ $\mu m/v^2$		4,66		4,23		6,3		4,08	

Connaissant la relation (94), on en a déduit la valeur des paramètres α et β , l'équation (94) s'écrit alors :

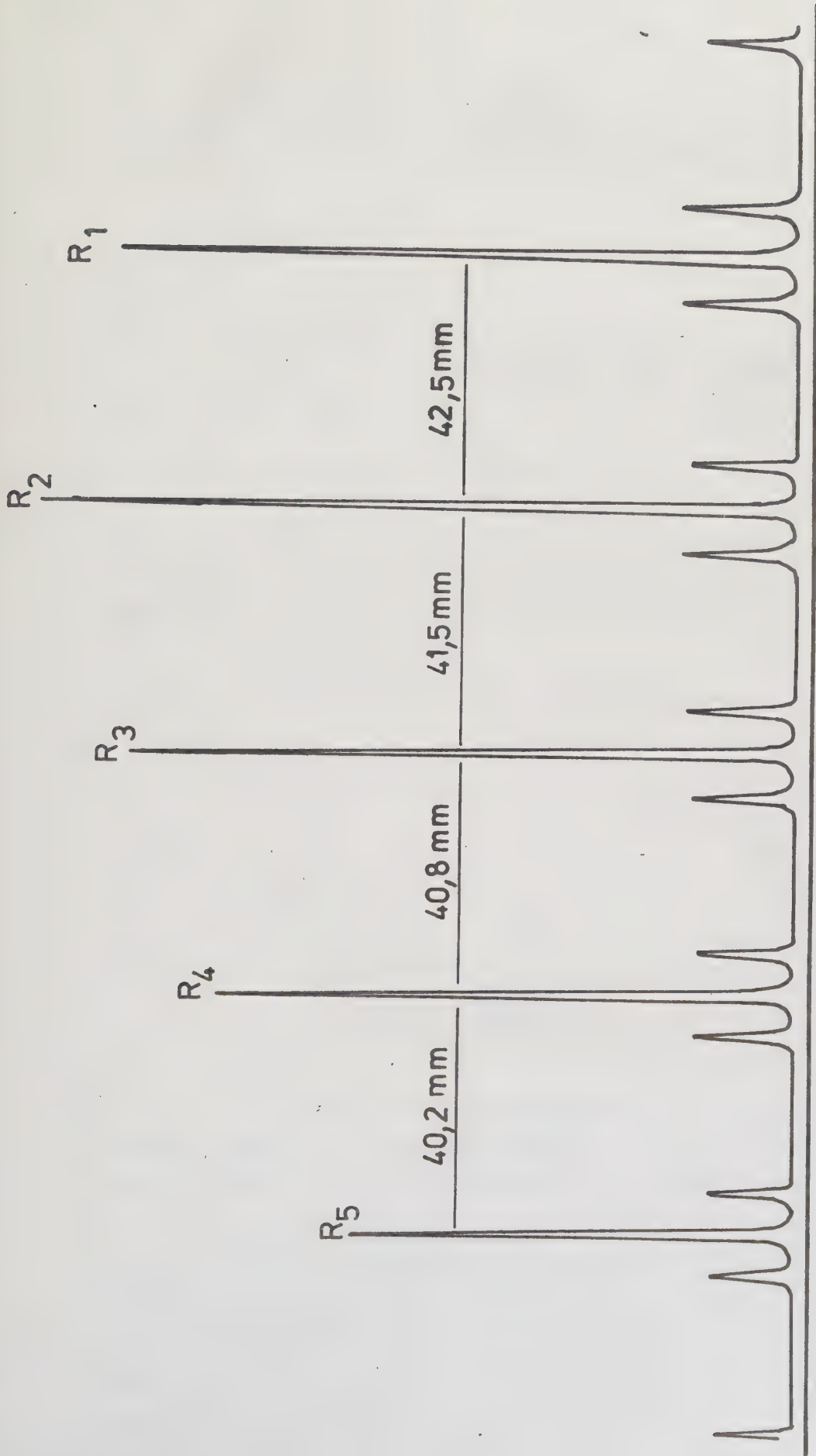


Figure 20 | Défilement de plusieurs ordres du spectromètre

$$x_{\text{enp}} = 1,685 \cdot 10^{-3} V + 2,41 \cdot 10^{-7} V^2 \quad (96)$$

Si on introduit ceci dans l'équation (95), on obtient les résultats suivants pour les intervalles spectraux mesurés Δf :

N° D'ordre	1	2	3	4	5	Moy.	Dispersion
$\frac{\Delta f}{\Delta}$	0,995	1,0017	1,0057	0,9955	0,9985	1,0002	0,0038

Tableau 1

La dispersion des résultats est beaucoup plus faible que pour les valeurs non corrigées où la dispersion avoisine 1,4 GHz pour 27 GHz, c'est-à-dire 5 % alors qu'après correction elle n'est que de 0,4 %.

Si on applique cette correction aux résultats d'une autre expérience enregistrés sur un analyseur multicanaux, on trouve cette fois :

N° D'ordre	1	2	3	4	Moy.	Dispersion
$\frac{\Delta f}{\Delta}$	1,0230	0,9949	1,0015	0,9953	1,0037	0,013

Tableau 2

On constate encore une amélioration de la dispersion qui était là aussi autour de 5 % sans correction, mais on constate que la dispersion est près de 3,5 fois supérieure au cas précédent.

On peut expliquer ces variations par la précision assez faible (5 %) de la sortie auxiliaire du générateur de rampe, et par la différence du temps de balayage utilisé : 1 000 s dans le premier cas et 0,1 s dans le deuxième cas, ce qui a pu avoir comme effet de modifier les lois de déformation des céramiques. Ceci nous a conduit à envisager une autre méthode d'utilisation de la formule (95).

III.3.1.2 - Correction par minimisation.

On considère la formule (95) qu'on écrit ainsi :

$$\frac{\Delta f_{AB}}{\Delta} = \frac{2}{\lambda} k [l_A - l_B] [\alpha + \beta'(l_A + l_B)] \quad (96)$$

où on considère β' comme un paramètre en lui-même. Pour chaque série de résultats, on fait alors varier β' de telle façon qu'on trouve une valeur où la dispersion est minimum ; ensuite, si on fait défiler un intervalle spectrale libre Δ , il faut évidemment trouver $\frac{\Delta f_{AB}}{\Delta}$ égal à 1 ; cela peut être obtenu de deux façons : - soit en ajustant α , le paramètre principal piézoélectrique des céramiques, - soit en ajustant k le facteur d'échelle. Il semble qu'il soit plus physique de faire varier k et de garder α fixe car il semble peu probable qu'il varie beaucoup d'une expérience à l'autre.

Voici avec ce mode de calcul les résultats obtenus pour les expériences qui ont donné les tableaux 1 et 2.

N° Ordre $\frac{\Delta f_{AB}}{\Delta}$						Moy.	Dispersion
	1	2	3	4	5		
T_1	0,9978	1,0009	1,0055	0,9957	0,9995	0,9999	0,0037
T_2	1,0054	0,9868	1,0015	1,0026	—	0,9991	0,008

Tableau 3 :

T_1 a été obtenu pour $\beta = 2,48 \cdot 10^{-7} \mu/V^2$ et T_2 pour $\beta = 3,21 \cdot 10^{-7} \mu/V^2$.

On constate donc que cette méthode donne des résultats aussi bons que ceux de la méthode directe pour l'expérience d'où on a déduit α et β , mais que cette méthode améliore les résultats dans les autres cas ; la dispersion est ici réduite par un facteur 1,6.

Cette méthode est assez facile d'emploi bien qu'elle nécessite une série de calculs pour trouver le minimum de la dispersion, mais ces

calculs se font aisément avec un petit calculateur HP 45 ; car ils ne portent pas sur plus de 5 données numériques par série. Mais pour assurer la validité de cette méthode, il semble qu'il vaille mieux avoir au moins 4 valeurs numériques pour donner un sens à la dispersion.

III.4 - Incertitudes d'origine expérimentale.

La formule de diffusion (43) conduit au calcul d'incertitude suivant en ce qui concerne la variation de fréquence :

$$\frac{\Delta(|v' - v_0|)}{|v' - v_0|} = \frac{\Delta\theta}{2} \cotg \frac{\theta}{2} \quad (97)$$

à cette incertitude, s'ajoute la dispersion S mesurée lors des expériences et l'incertitude sur la détermination de l'intervalle spectral libre si bien que l'incertitude totale sur le changement de fréquence peut s'écrire :

$$\frac{\Delta(v' - v_0)}{(v' - v_0)} = \frac{S}{v' - v_0} + \frac{\Delta\theta}{2} \cotg \frac{\theta}{2} + \frac{\Delta(\Delta)}{\Delta} \quad (98)$$

Comme l'angle de diffusion a été réglé à $90^\circ \pm 20'$ à l'aide d'un miroir sur un support tournant gradué de $15'$ en $15'$, le deuxième terme est inférieur à 0,6 % ; quand au 3ème terme, il peut être au minimum de 0,3 % si la règle graduée est bien positionnée, sinon, il peut être plus grand.

Si on veut ensuite obtenir la vitesse du son, à l'incertitude sur la fréquence vient s'ajouter celle sur l'indice de réfraction du corps qui, dans la plupart des cas, n'excède pas 0,5 % quand les données dont on dispose sont dues à des mesures dans le rouge ; mais pour un indice déterminé dans le bleu, l'erreur sur l'indice peut être corrigée et devient négligeable.

$$\frac{\Delta y}{y} = \frac{\Delta n}{n} + \frac{S}{v' - v_0} + \frac{\Delta\theta}{2} \cotg \frac{\theta}{2} + \frac{\Delta(\Delta)}{\Delta} \quad (99)$$

Pour comparer les valeurs obtenues à celles fournies par la littérature, il est nécessaire de définir convenablement toutes les conditions expérimentales et, en particulier, la température du corps étudié. A cet effet, nos mesures ont été généralement effectuées à 20°C, c'est-à-dire la température de la salle qui est thermostatée à 1°C près. D'après EASTMAN⁽²⁸⁾, cela ne doit pas apporter une incertitude supérieure à ± 5 m/s pour la majorité des liquides, c'est-à-dire une incertitude relative de l'ordre de 0,4 % sur la vitesse du son mesurée.

En récapitulant, on trouve que l'incertitude relative sur la mesure du décalage Brillouin est d'environ 1,5 % et que celle sur la mesure absolue de la vitesse du son est certainement inférieure à 2,5 %.

Toutefois, il est possible d'utiliser le spectromètre en l'étalonnant à partir d'une raie Brillouin bien connue par exemple celle de l'acétone ou de l'eau et ainsi l'incertitude pourrait être réduite ; on peut alors dire que l'incertitude relative sur une mesure absolue de la vitesse du son peut être réduite jusqu'à 1,5 %.

On remarque que la précision des résultats donnés par ce type d'expérience est bien meilleure quand il s'agit de détecter des variations de vitesse dues à des paramètres extérieurs, tels que la température ou la pression ; alors les variations de vitesse peuvent être connues avec une précision qui peut atteindre 0,4 %.

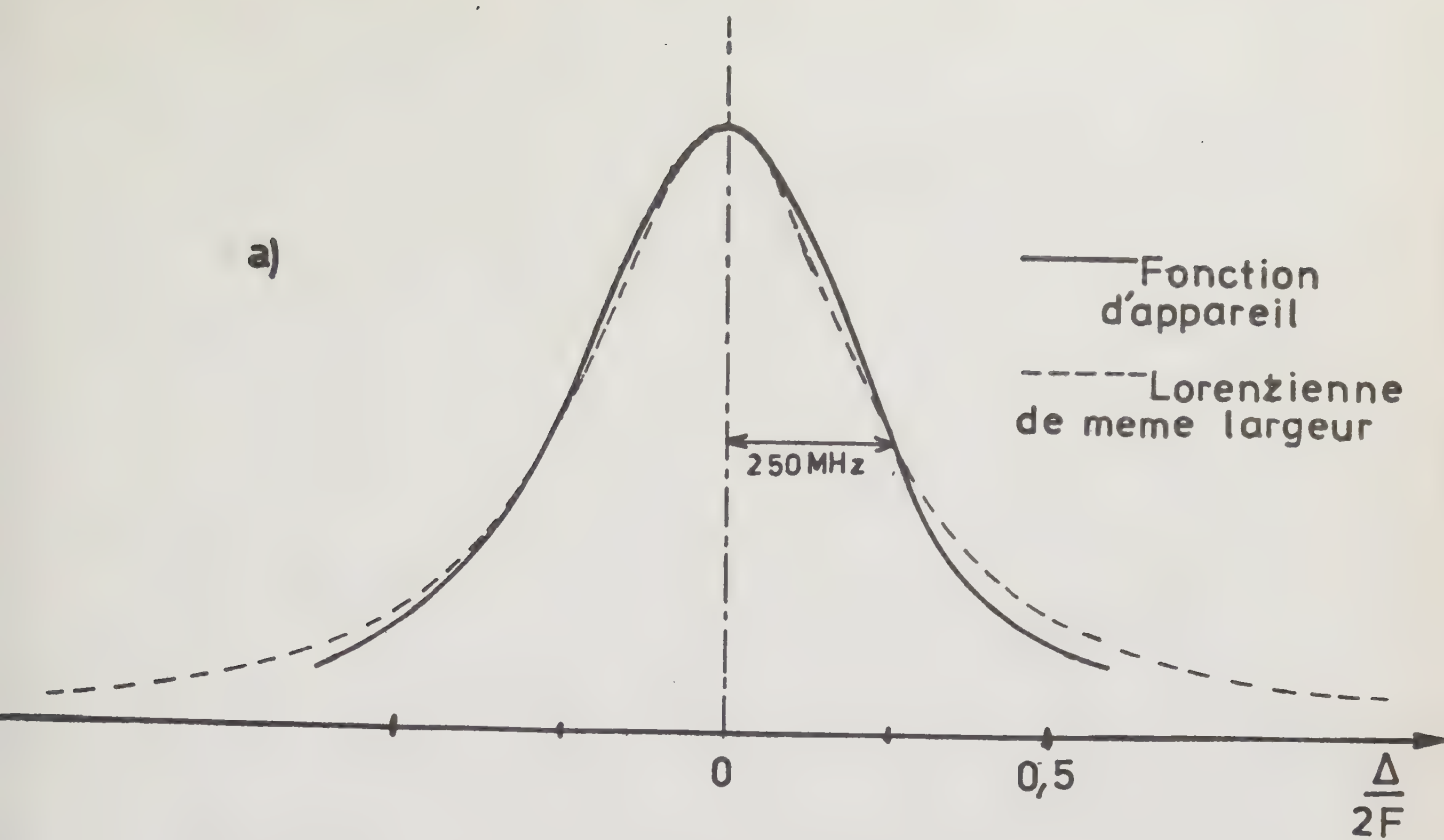


Figure 21 | a) *Fonction d'appareil*
 b) *Finesse observée.*

b)



IV - RESULTATS.

IV.1 - Fonction d'appareil.

La fonction d'appareil telle qu'elle est représentée sur la fig. 21 a) est bien symétrique et peut être décrite avec une bonne approximation par une Lorentzienne ; on constate, en effet, que l'écart entre la Lorentzienne et la fonction d'appareil est inférieur à 20 MHz dans sa partie supérieure et ne dépasse pas 50 MHz au 1/10^è de la hauteur totale.

Cette courbe se reproduit k fois si on fait défiler k ordres du Fabry-Pérot, on voit alors sur la fig. 21 b que la finesse réelle peut atteindre 80 avec un trou d'épingle de 50 μ m, mais c'est relativement rare et il est très difficile de conserver ce réglage très longtemps, vraisemblablement à cause des instabilités mécaniques du montage ou du bâtiment. Aussi, la plupart du temps, on se contente pour la finesse d'une valeur voisine de 50 ou 60. Cette valeur de la finesse est mesurée périodiquement en étudiant la diffusion élastique produite par un petit cylindre d'alumine frittée ou par l'arête d'un dièdre d'un cristal ou d'une cuve en verre. On arrête les réglages quand la finesse a atteint une valeur suffisante et quand la fonction d'appareil devient symétrique.

IV.2 - Mesures effectuées sur des liquides.

Afin de tester notre montage, nous avons décidé d'étudier certains liquides possédant des spectres caractéristiques et sur lesquels nous disposons d'une importante quantité de résultats en bibliographie (28) (10) (29).

Ces liquides ont été étudiés les premiers car ils diffusent assez bien la lumière, et ce sont des corps assez courants. Bien que peu de mesures aient été effectuées avec un laser de si courte longueur d'onde, on trouvera des résultats à des fréquences légèrement plus faibles quand elles auront été réalisées à l'aide d'un laser Helium-Néon, mais en retro-diffusion.

De plus, on sait que certains corps ne présentent pas de dispersion de la vitesse du son à ces fréquences ; on pourra donc s'en servir pour parfaire l'étalonnage de notre spectromètre ; c'est le cas notamment de l'acétone et de l'eau.

Toutes les mesures ont été réalisées à $20 \pm 1^\circ\text{C}$ pour un angle de diffusion égal à $90^\circ \pm 10'$; alors que les liquides étaient dans une cellule parallélépipédique en verre optique ; ce sont ces mêmes cellules qui servent à étudier la diffusion Raman des liquides.

Pour obtenir une valeur précise de l'indice de réfraction à $4416 \text{ \AA}$ nous avons corrigé les valeurs connues des indices à $4340 \text{ \AA}$ et $4860 \text{ \AA}$ (29) pour tous les liquides.

IV.2.1 - Diffusion par l'acétone.

IV.2.1.1 - Conditions expérimentales.

L'acétone utilisé est celui commercialisé par la Société MERCK qui garantit sa pureté à 99,5 % minimum.

L'indice de réfraction de l'acétone à $4416 \text{ \AA}$ est : $n_{\lambda_0} = 1,3672$.

Le spectre obtenu se trouve sur la figure 22. Il a été enregistré en détection continue sans amplification et cela pendant 1 000 s ; la finesse était réglée à une valeur voisine de 55.

IV.2.1.2 - Résultats.

Si d'après les mesures effectuées directement sur la figure 22 on porte les valeurs de la fréquence Brillouin ν_s divisées par l'intervalle spectral libre Δ sur la première ligne du tableau 4, on a les résultats suivants :

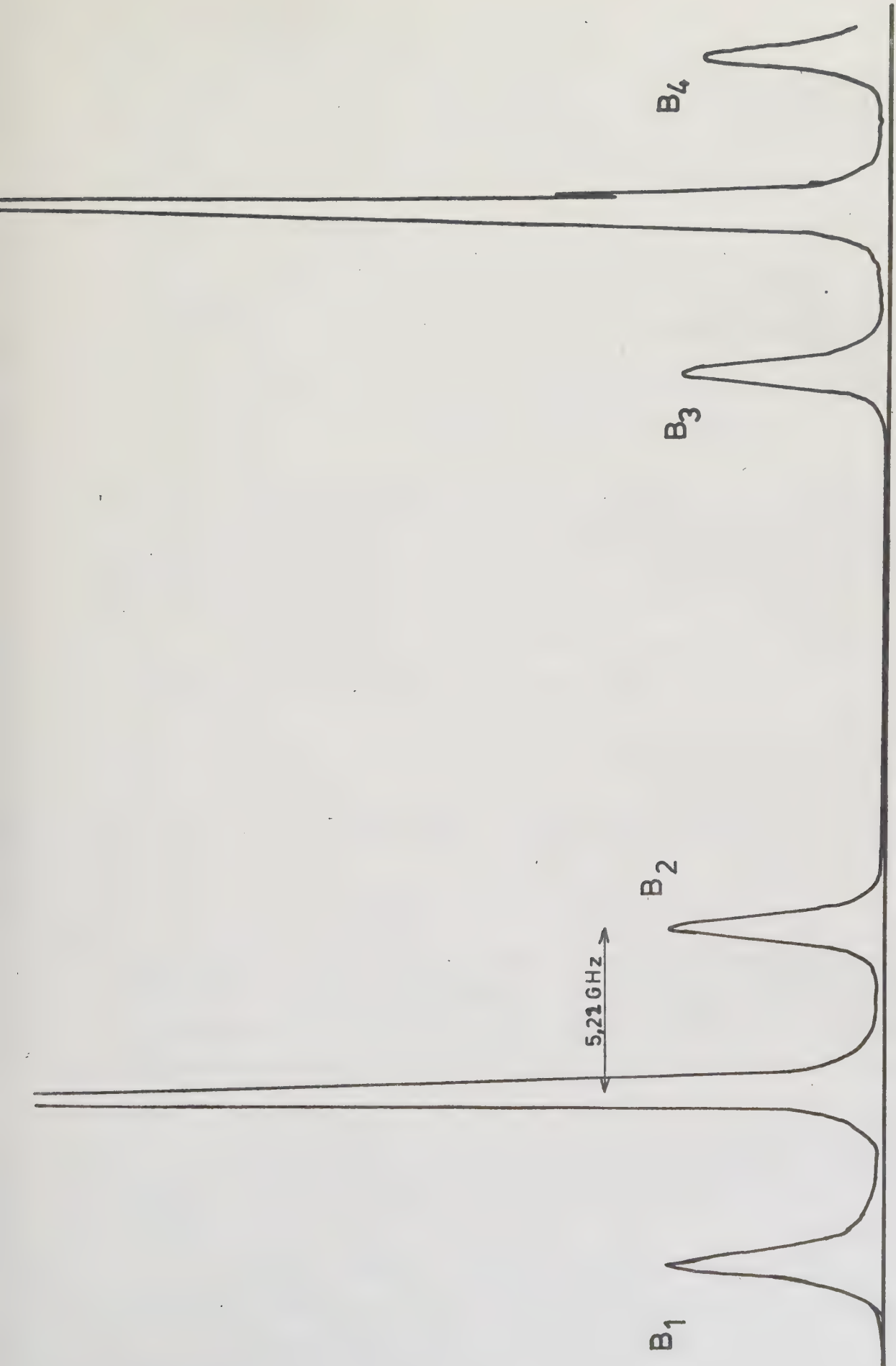


Figure 22 | Spectre Brillouin de l'acétone.

Raie	B ₁	B ₂	B ₃	B ₄	Valeur moyenne	Ecart type
$(\frac{v_s}{\Delta})_{lu}$	0,1925	0,1875	0,1800	0,1762	0,1841	0,007
$(\frac{v_s}{\Delta})$ corrigé	0,1849	0,1825	0,1849	0,1831	0,1838	0,001

Tableau 4 | *Fréquence acoustique réduite à un intervalle spectral libre pour l'acétone.*

La deuxième ligne du tableau 4 représente cette même grandeur mais après lui avoir fait subir la correction parabolique définie précédemment. On trouve alors que la dispersion passe de 3,8 % à 0,5 %, mais la variation de la valeur moyenne est très faible (0,2 %).

Si on suppose que les indications portées sur la règle graduée du Fabry-Pérot sont valables, on trouve alors :

$$v_s = 5,05 \pm 0,08 \text{ GHz}$$

ce qui fournit une valeur de la vitesse du son égale à :

$$v = 1153 \pm 18 \text{ m/s}$$

Cette valeur trouvée étant plus faible d'environ 40 m/s à celles mesurées par diffusion Brillouin stimulée à 3,5 GHz ; 4,6 GHz et 5,1 GHz ⁽²⁹⁾ et par méthodes ultrasonores ⁽¹⁰⁾ ; on ne peut considérer l'accord valable car la marge d'incertitude est ici trop faible pour faire coïncider ces résultats.

Par contre, si on prend la valeur de v fournie par la littérature : $v = 1190 \pm 5 \text{ m/s}$, on pourra déterminer la valeur réelle de Δ en admettant que $v_s = 5,21 \text{ GHz}$.

On peut essayer de fournir une estimation de la largeur à mi-hauteur des raies et par là du coefficient d'atténuation spatial.

La demi-largeur à mi-hauteur vaut 400 MHz dont il faut retrancher la demi-largeur de la fonction d'appareil qu'on peut évaluer

d'après la raie centrale à 260 MHz ; si on tient compte de l'élargissement dû à un angle solide de collection non nulle, il faudra diviser la largeur par 5, on aura alors pour le coefficient d'atténuation spatial :

$$\alpha = 1,5 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-1} \text{ ou encore}$$

$$\frac{\alpha}{v_s} \cdot 10^{17} = 5,5 \text{ cm}^{-1} \text{ sec}^2$$

Si on considère les intensités diffusées par les processus Brillouin et Rayleigh, on voit qu'approximativement le rapport $\frac{I_c}{2I_B}$ atteint la valeur 10 alors que la valeur prévue par Landau-Placzek est de $\gamma = 1 = 0,39$ et celle calculée par FABELINSKII⁽⁹⁾ vaut 0,57.

Cela s'explique aisément par la présence de poussières dans le liquide ; ces poussières provoquent une diffusion élastique importante qui masque la diffusion quasi-élastique due aux fluctuations d'entropie que prévoit le rapport de Landau-Placzek.

IV.2.2 - Diffusion par l'eau.

IV.2.2.1 - Conditions expérimentales.

Nous avons utilisé de l'eau distillée obtenue de façon habituelle.

La valeur de l'indice de réfraction utilisée est $n_\lambda = 1,3399$. La figure 23 représente un spectre enregistré à l'aide de l'analyseur multicanaux en un temps relativement court (460 s) et en 92 balayages.

IV.2.2.2 - Résultats.

Le tableau 5 représente les valeurs des fréquences Brillouin réduites à l'intervalle spectral ; la première ligne est obtenue directement à partir de la figure 23, et la 2ème ligne après la correction parabolique.

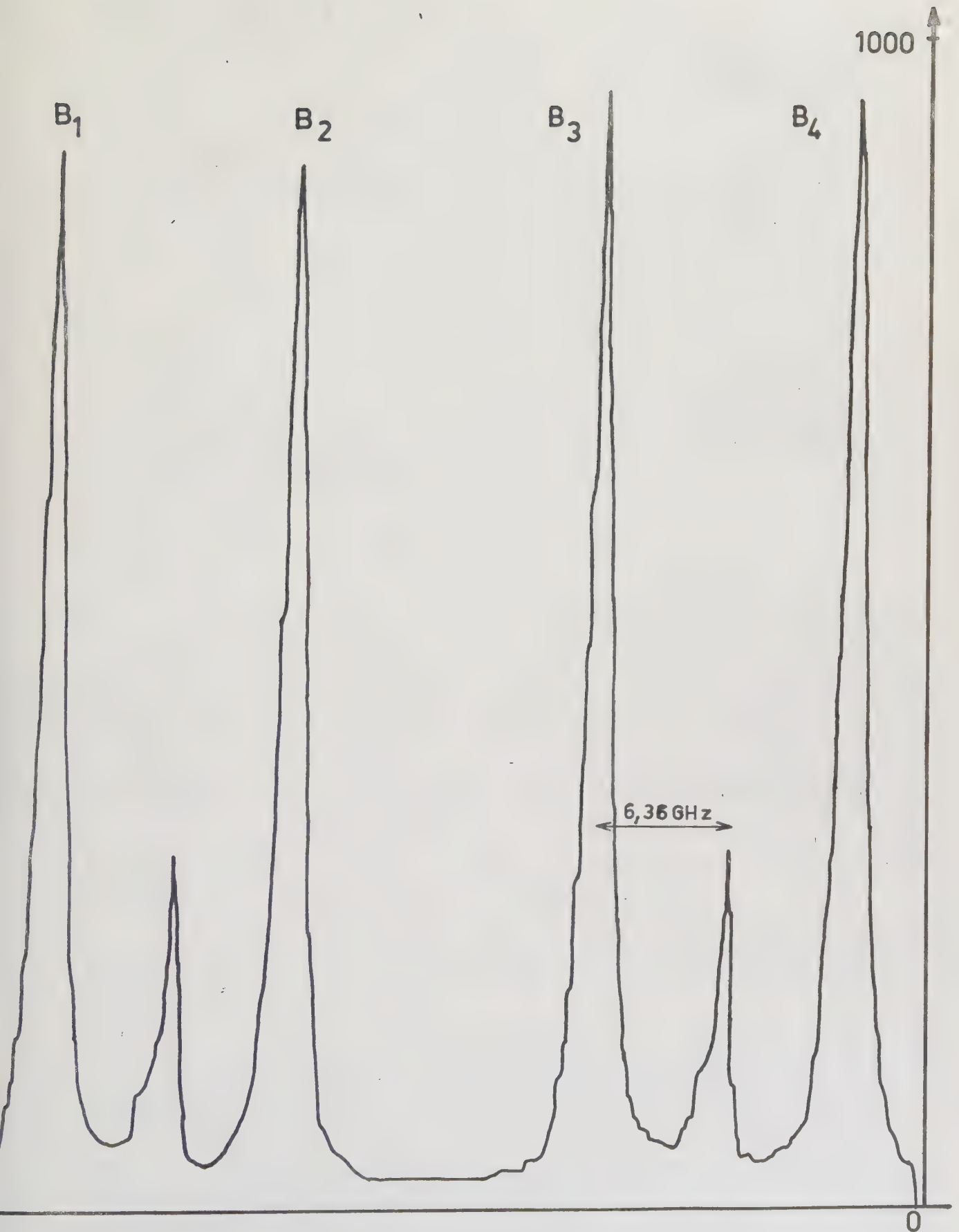


Figure 23 | Spectre Brillouin de l'eau

Rate	B ₁	B ₂	B ₃	B ₄	valeur moyenne	Ecart type
$(\frac{v_S}{\Delta})_{lu}$	0,2400	0,2267	0,2233	0,2133	0,2258	0,01
$(\frac{v_S}{\Delta})_{corrigé}$	0,2237	0,2245	0,2241	0,2240	0,2241	0,0003

Tableau 5 | *Fréquence relative des ondes acoustiques dans l'eau.*

On constate là aussi que les résultats lus ont une dispersion relativement élevée que la correction parabolique ramène à 0,15 %. On aboutit au résultat suivant :

$$\frac{v_S}{\Delta} = 0,2241 \pm 0,0004$$

Si là encore on utilise la lecture directe de l'écartement des miroirs, on obtient $v_S = 6,12 \pm 0,05$ GHz et $v = 1426 \pm 23$ m/s, ce qui est une valeur 4 % en deçà des valeurs admises dans la littérature^{(31), (32)}. Mais si on utilise l'étalonnage réalisé à l'aide de l'acétone $\Delta = 28,3 \pm 3$ GHz on obtient $v_S = 6,35 \pm 0,11$ GHz et $v = 1480 \pm 26$ m/s. Ce résultat est en très bon accord avec la valeur communément admise de 1482 m/s ; et comme cette mesure a une faible incertitude, on pourra s'en servir comme étalonnage, à la place de celui donné par l'acétone qui était moins précis. On trouve alors $\Delta = 28,38 \pm 0,20$ GHz.

Comme le spectre de la figure 23 montre une raie Rayleigh assez faible, on peut essayer de mesurer les intensités relatives de ces raies ; on trouve : $\frac{I_C}{2I_B} = 0,14$.

Cette valeur est très supérieure à celle prévue par FABELINSKII qui est $9 \cdot 10^{-3}$, mais elle a été approchée dans les expériences de O'CONNOR et SCHLUPF⁽³²⁾.

En ce qui concerne la largeur des raies Brillouin, on trouve qu'elle est légèrement plus grande que celle des raies Rayleigh (14 canaux contre 11,5) d'où une demi-largeur lue de 0,12 GHz et une atténuation

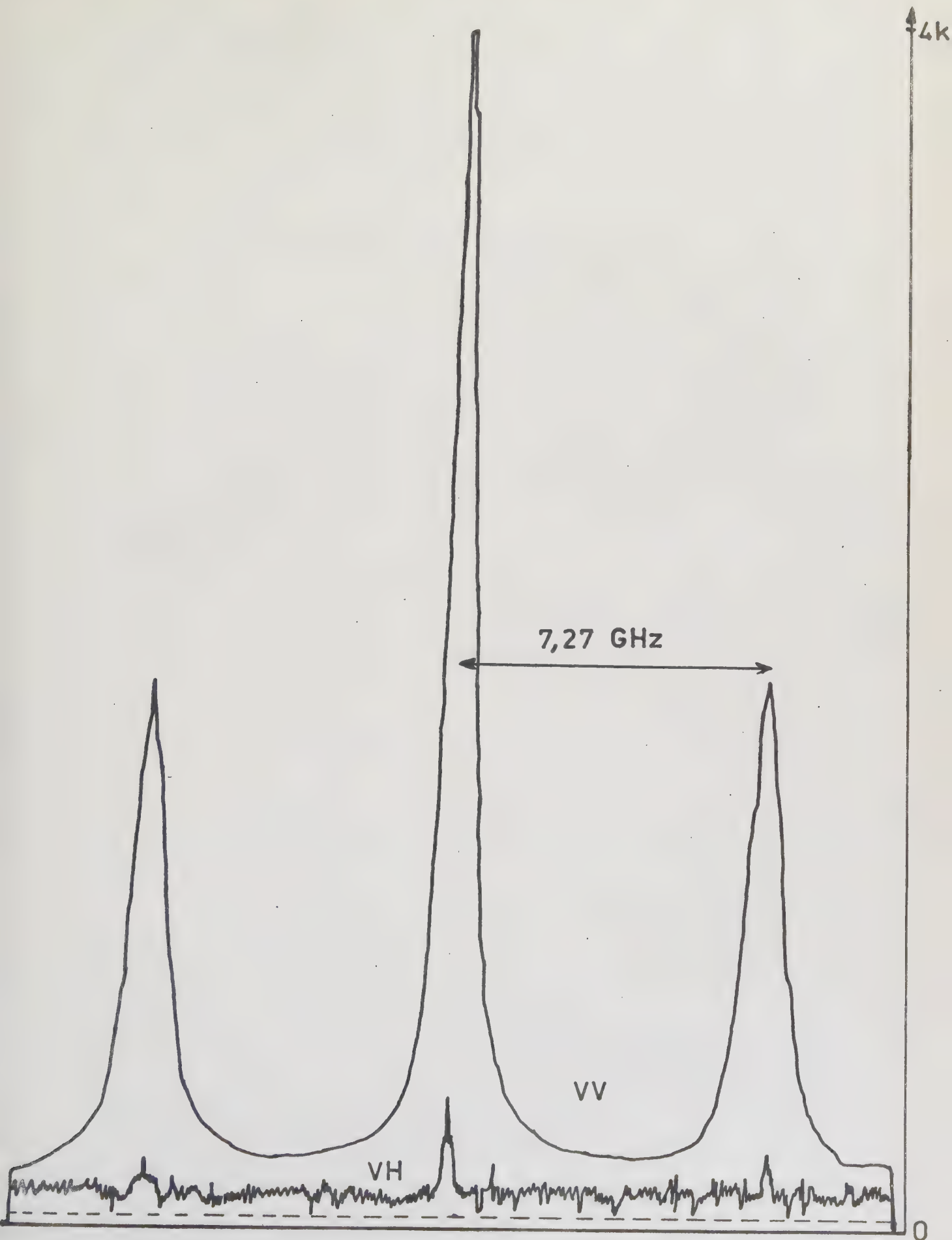


Figure 24 | Spectres Brillouin du Benzène.

spatiale après connection : $\alpha = 10^3 \text{ cm}^{-1}$.

D'où :

$$\frac{\alpha}{f^2} 10^{17} = 2,5 \text{ cm}^{-1} \text{ sec}^2$$

IV.2.3 - Diffusion par le benzène.

IV.2.3.1 - Conditions expérimentales.

Le benzène utilisé nous a été fourni par la Société RHÔNE-POULENC, qui donne une concentration en impuretés égale à 0,4 %.

L'indice de réfraction à 4416 Å est $n_{\lambda_0} = 1,5221$.

La fig. 24 représente deux spectres enregistrés à l'aide de l'analyseur multicanaux en des temps égaux à $270 \times 10 \text{ s}$, mais pour des polarisations différentes. Dans un cas noté VV, le vecteur polarisation des photons incident et diffusé est perpendiculaire au plan de diffusion et dans le second noté VH le vecteur polarisation des photons diffusés est dans le plan de diffusion, alors que la polarisation des photons incidents est inchangée, on mesure alors la lumière dite dépolarisée.

IV.2.3.2 - Résultats.

Les fréquences ν_S n'ont pas été calculées à partir du spectre de la fig. 24, mais à partir d'un autre spectre qui présentait 3 raies Brillouin.

Les résultats sont présentés dans le tableau 6 sous la même forme que dans les précédents tableaux :

Raie	1	2	3	valeur moyenne	Ecart type
$\left(\frac{\nu_S}{\Delta}\right)_{lu}$	0,2632	0,2493	0,2465	0,253	0,009
$\left(\frac{\nu_S}{\Delta}\right)_{\text{corrigé}}$	0,2565	0,2556	0,2569	0,2563	0,0007

Tableau 6 | Fréquence relative des ondes acoustiques dans le benzène.

Pour les valeurs corrigées, on trouve une faible dispersion de 0,3 % et en utilisant l'étalonnage précédent, on obtient :

$$\nu_S = 7,27 \pm 0,09 \text{ GHz}$$

$$\gamma = 1491 \pm 19 \text{ m/s}$$

Ces valeurs correspondent très bien avec celles fournies par la littérature, bien qu'elles y soient un peu dispersées^{(28), (29), (33), (34)}.

Quant à l'atténuation de ces ondes, il faut noter qu'on mesure une largeur de 130 MHz qui correspond à une valeur vraie de 50 MHz car l'ouverture n'était que de $f/12$. On aboutit alors à $\alpha = 2 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-1}$, d'où : $\frac{\alpha}{2} 10^{17} = 4 \text{ cm}^{-1} \text{ sec}^2$ valeur en assez bon accord avec⁽³⁴⁾.

Cette valeur est prise par défaut car il est possible que la raie centrale ne soit pas entièrement due à la diffusion élastique.

Si on compare les spectres VV et VH, on constate que la quantité de lumière dépolarisée diffusée par le benzène n'est pas négligeable ; la cause de cette diffusion est une raie Rayleigh dépolarisée s'étendant sur plusieurs cm^{-1} et sa convolution fournit à notre échelle un fond continu important. On découvre sur ce fond continu un très petit spectre semblable au spectre VV. On peut penser qu'il provient d'une insuffisance de filtrage du filtre polaroid.

IV.2.4 - Diffusion par le tétrachlorure de carbone.

IV.2.4.1 - Conditions expérimentales.

Le tétrachlorure de carbone étudié a été fourni par la Société MERCK qui garantit une pureté de 99 %.

La valeur de l'indice de réfraction à 4416 Å est $n_{\lambda_0} = 1,4721$. Le spectre représenté sur la fig. 25 a été enregistré à l'aide de l'analyseur multicanaux en 1350 s réparties en 270 balayages.

IV.2.4.2 - Résultats.

Le tableau 7 donne les résultats numériques correspondant au spectre de la fig. 25.

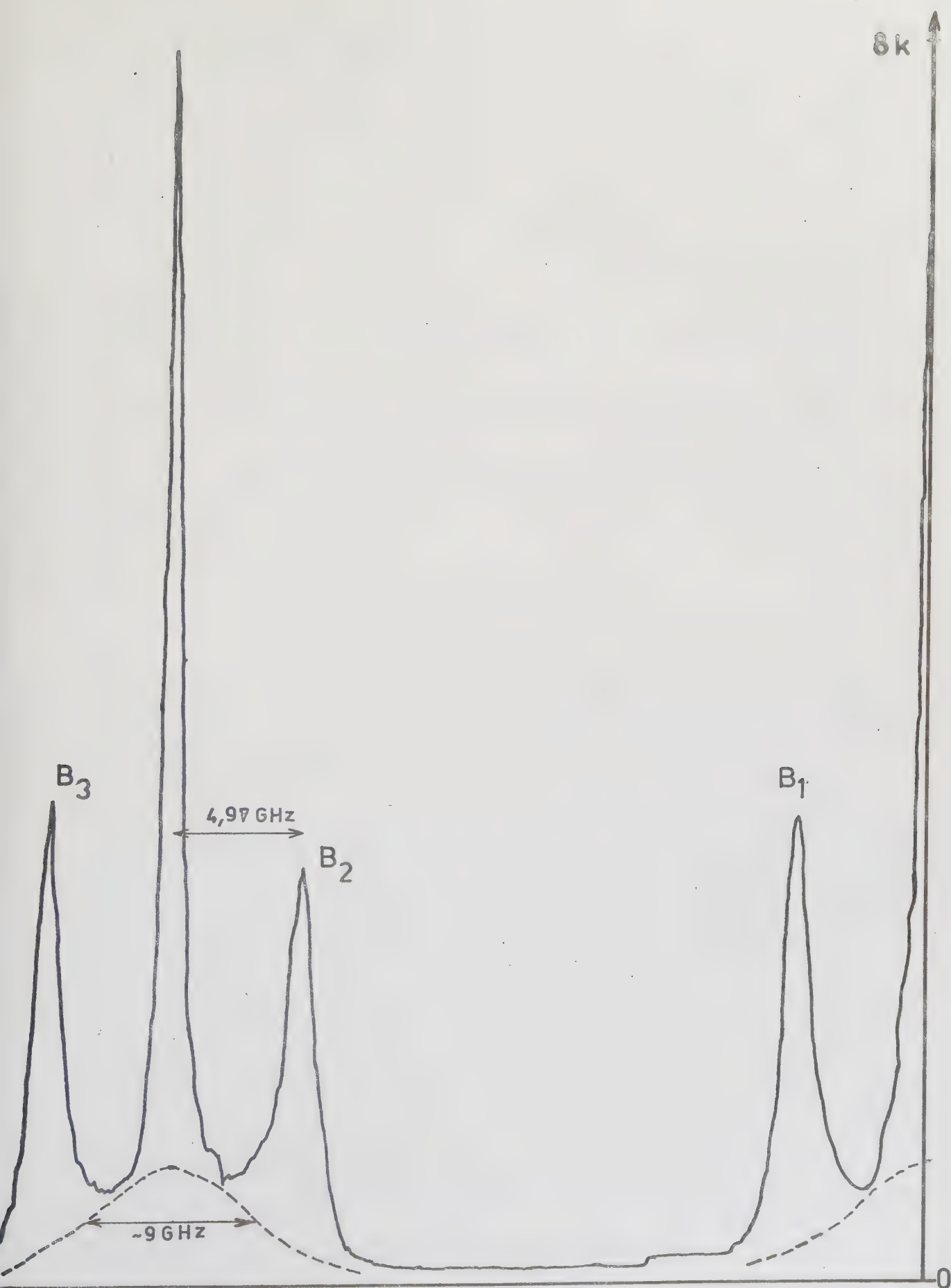


Figure 25 | Spectre Brillouin du tétrachlorure de carbone.

Raie	B_1	B_2	B_3	Valeur moyenne	Ecart type
$\left(\frac{v_S}{\Delta}\right)_{Lu}$	0,1836	0,1667	0,1642	0,1715	0,01
$\left(\frac{v_S}{\Delta}\right)_{\text{corrigé}}$	0,1750	0,1746	0,1752	0,1749	0,0003

Tableau 7 | *Fréquence relative des ondes acoustiques dans le CCl_4 .*

On en déduit la valeur de la fréquence de l'onde acoustique et sa vitesse :

$$v_S = 4,96 \pm 0,06 \text{ GHz}$$

$$v = 1053 \pm 12 \text{ m/s}$$

ce qui est en excellent accord avec une référence citée dans la référence (29) et qui donne : $v = 1052 \text{ m/s}$ à $v_S = 4,8 \text{ GHz}$. Cette mesure a été effectuée par CHIAO et FLEURY.

Si là aussi on suppose la raie centrale due à une diffusion élastique, on trouve comme demi-largeur lue 340 MHz correspondant à une demi-largeur réelle de 70 MHz , d'où un coefficient d'atténuation spatial : $\alpha = 4.10^{34} \text{ cm}^{-1}$, d'où $\frac{\alpha}{f^2} 10^{17} = 17 \text{ cm}^{-1} \text{ sec}^2$, ce qui correspond à l'ordre de grandeur de la mesure effectuée par CAROME (36).

Ce spectre présente une singularité par rapport aux précédents car aux fréquences comprises entre v_0 et $v_0 \pm v_S$, il y a une quantité importante de lumière diffusée ; c'est la composante du spectre prévue par MOUNTAIN (13) et calculée pour le CCl_4 par NICHOLS et CAROME (35) ; cette composante centrée sur v_0 est due à un mécanisme de relaxation relatif à la réorientation des molécules dans le liquide. On peut d'après la largeur à mi-hauteur de cette composante avoir une idée de ce temps de relaxation. On trouve ici :

$$\tau = \frac{1}{\Gamma} = 3,50^{-11} \text{ s}$$

ce qui est en bon accord avec la valeur citée par Nichols de $5,4 \cdot 10^{-11} \text{ s}$.

IV.2.5 - Diffusion par le cyclohexane.

IV.2.5.1 - Conditions expérimentales.

Le cyclohexane utilisé a été fourni par la Société MERCK qui garantit une pureté minimum de 99,5 %.

L'indice de réfraction a une valeur de 1,424 à 5893 Å, mais nous n'avons pas de données concernant une longueur d'onde plus courte ; on prendra donc : $n_{\lambda_0} = 1,424 \pm 0,006$.

Le spectre représenté sur la fig. 25 a été effectué avec l'analyseur multicanaux en un temps très court (2 min.) et en 25 balayages.

IV.2.5.2 - Résultats.

Le tableau 8 rassemble les résultats comme ses précédents.

Raie	B ₁	B ₂	B ₃	B ₄	Valeur moyenne	Ecart type
$(\frac{v_S}{\Delta})_{lu}$	0,2287	0,2210	0,2133	0,2102	0,2183	0,008
$(\frac{v_S}{\Delta})_{corrigé}$	0,2201	0,2177	0,21848	0,21805	0,2186	0,0010

Tableau 8 | Fréquence relative d'ondes acoustiques dans le cyclohexane

d'où la fréquence et la vitesse de l'onde acoustique :

$$v_S = 6,20 \pm 0,09 \text{ GHz}$$

$$v = 1360 \pm 25 \text{ m/s}$$

Ces valeurs semblent bien correspondre avec celles fournies par WIGGINS⁽²⁹⁾ qui est de 1346 m/s pour 6,1 GHz, surtout si on remarque que notre valeur est donnée par excès car l'indice de réfraction à 4416 Å est certainement un peu plus faible qu'à 5893 Å.

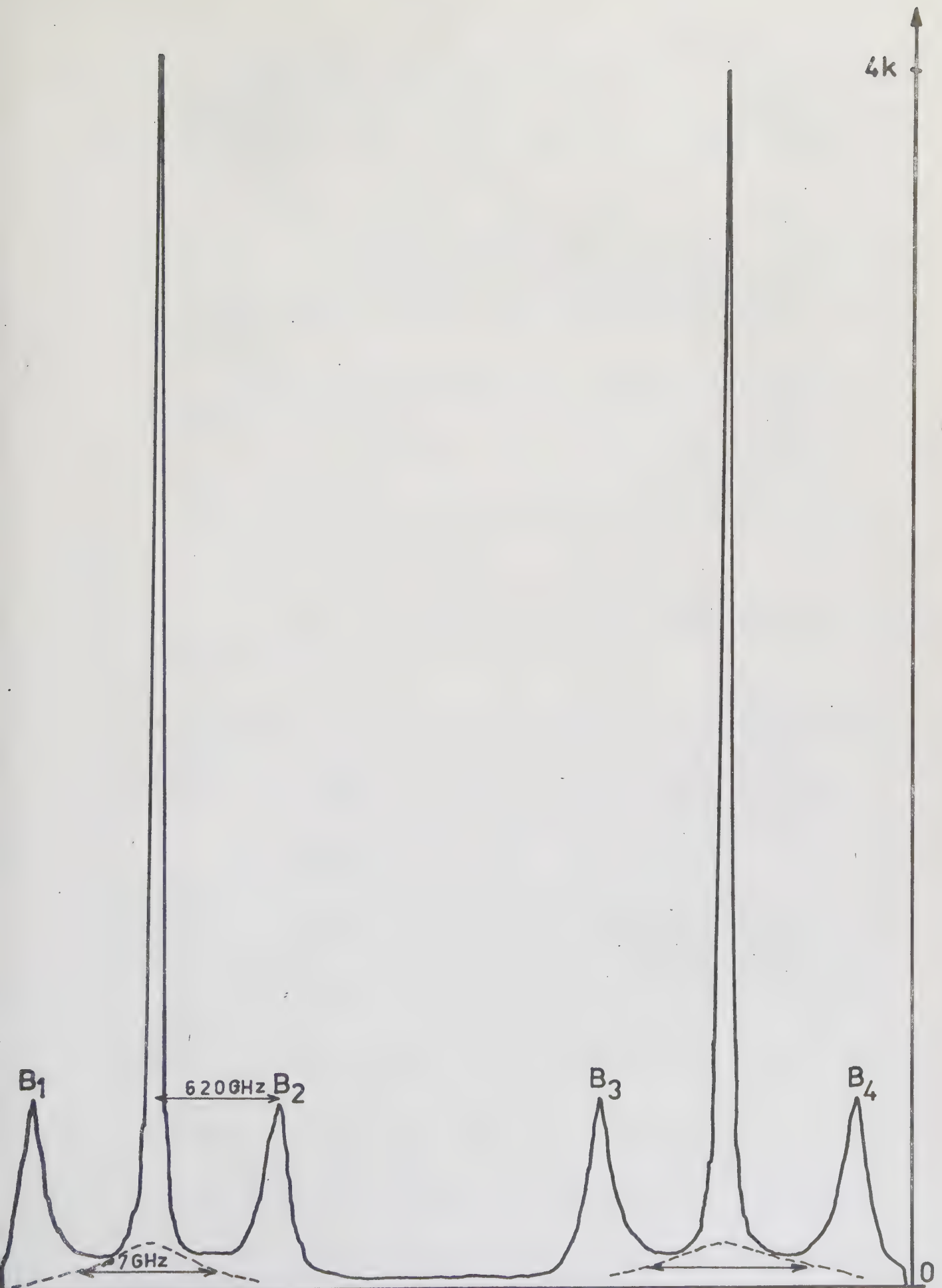


Figure 26 | Spectre Brillouin du cyclohexane.

D'après les largeurs comparées des raies Brillouin et Rayleigh, on lit une demi-largeur Brillouin de 615 MHz qui doit correspondre à une largeur réelle de 240 MHz, d'où un coefficient d'atténuation spatial : $\alpha = 10 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-1}$ et un rapport $\alpha/v_S^2 \cdot 10^{17} = 28 \text{ cm}^{-1} \text{ sec}^2$.

Le spectre de la fig. 26 tout comme celui de la fig. 25 montre la présence d'une quatrième composante due à la présence d'un phénomène de relaxation ; mais il paraît moins important que pour le tétrachlorure de carbone ; néanmoins, on peut estimer le temps de relaxation à environ $\tau = 4,5 \cdot 10^{-11} \text{ s}$.

Mais là non plus, il n'est pas possible de faire la comparaison des intensités.

IV.2.6 - Résultats et conclusions de ces mesures sur les liquides.

Le tableau 9 récapitule les résultats enregistrés lors de l'étude des liquides précédents.

liquide	v_S GHz (cm^{-1})	v_q m/s	$\alpha/v_S^2 \text{ cm}^{-1} \text{ s}^2$	$\tau \text{ rel}_s$
eau	6,36 (étalon) (0,212)	1482	$2,5 \cdot 10^{-17}$	
acétone	$5,215 \pm 0,08$ (0,174)	1192 ± 18	$5,5 \cdot 10^{-17}$	
benzène	$7,27 \pm 0,09$ (0,242)	1491 ± 19	$4 \cdot 10^{-17}$	
tétrachlorure de carbone	$4,96 \pm 0,06$ (0,166)	1053 ± 12	$17 \cdot 10^{-17}$	$3,2 \cdot 10^{-11}$
cyclohexane	$6,20 \pm 0,09$ (0,207)	1360 ± 25	$28 \cdot 10^{-17}$	$3,6 \cdot 10^{-11}$

Mais toutes ces mesures n'ont pas la même précision ; ainsi si les fréquences et les vitesses des ondes acoustiques sont données



souvent à 1 % voir à 1,5 % ; l'incertitude sur α/f^2 doit pouvoir être plus près de 100 % que de 1 % et une telle mesure ne fournit qu'un ordre de grandeur ; il en est de même pour le temps de relaxation des liquides tels que CCl_4 ou le cyclohexane.

En conclusion, on peut dire que notre appareillage donne des résultats sensiblement équivalents à ceux trouvés dans la littérature, mais il faut ajouter que si nous tenions à étudier certains liquides en détail, il serait possible d'obtenir des mesures plus précises en ce qui concerne l'atténuation ; il suffirait pour cela de diminuer l'intervalle spectral libre jusqu'à environ 10 ou 15 GHz et nous serions certainement en mesure d'obtenir des valeurs plus précises de l'atténuation.

En fait, ce que nous cherchions était de réaliser un étalonnage précis du spectromètre pour étudier la diffusion Brillouin dans les solides ; et chemin faisant, nous avons testé notre appareillage et réalisé quelques mesures sur des liquides.

IV.3 - Etude de la diffusion par les solides.

Après avoir testé avec succès notre appareillage sur quelques liquides, nous lui avons fait subir une épreuve plus délicate, qui consiste à mesurer la lumière diffusée à 90° par des cristaux à la température ambiante.

C'est une expérience relativement délicate car les cristaux diffusent beaucoup moins bien la lumière que les liquides ; le rapport entre la lumière diffusée par une onde longitudinale dans un liquide et un solide est d'environ 10 et il y a environ un facteur 100 entre l'intensité de la lumière diffusée par une onde de compression et par une onde transverse.

Toutes les expériences ont été réalisées à 20°C et avec un angle de diffusion égal à 90° .

Afin d'essayer de masquer au maximum la lumière parasite diffusée par les défauts des cristaux, on a placé un diaphragme d'ouverture convenable près du cristal pour limiter le volume diffusant au volume utile.

Comme les fréquences acoustiques sont plus élevées que celles des liquides, il existe une indétermination de la fréquence quand on

considère l'enregistrement ; appelons α la plus petite fraction d'intervalle spectral entre une raie Rayleigh et une raie Brillouin ; on a alors :

$$v_S = (n \pm \alpha)\Delta$$

où n est entier positif ou nul, mais tel que $(n - \alpha)$ soit positif. On détermine n et le signe de α par une autre expérience où on a changé la valeur de l'intervalle spectral.

IV.3.1 - Diffusion par le chlorure de sodium (NaCl).

IV.3.1.1 - Conditions expérimentales.

Le cristal utilisé est une partie d'un monocristal produit par QUARTZ et SILICE ; le morceau utilisé a été clivé suivant un plan (100) et il a la forme d'un parallélépipède de dimensions $16 \times 17 \times 4 \text{ mm}^3$; comme la qualité optique du cristal n'est pas exceptionnelle, nous avons dû choisir un endroit dans le cristal où la lumière parasite diffusée était la moins intense.

Les données numériques dont nous disposons sont les suivantes :

- indice de réfraction : $n_\lambda = 1,558$

- constantes élastiques $(37)^\circ$:

$$C_{11} = 0,486 \cdot 10^{11} \text{ N/m}^2$$

$$C_{12} = 0,127 \cdot 10^{11} \text{ N/m}^2$$

$$C_{44} = 0,128 \cdot 10^{11} \text{ N/m}^2$$

(cristal de symétrie cubique)

- densité $\rho = 2,18$.

Des mesures ont été effectuées avec la détection type "shot noise" en 1 000 s et à l'aide de l'analyseur multicanaux en $200 \times 5\text{s}$.

Nous n'avons pas analysé la polarisation de la lumière diffusée, et le faisceau incident était perpendiculaire au plan (100) alors que le faisceau diffusé était lui perpendiculaire au plan (010).

IV.3.1.2 - Résultats.

La Fig. 26 montre un spectre enregistré avec la détection type "shot noise" ; mais, afin d'obtenir des valeurs plus précises, nous avons effectué les mesures sur un spectre fourni par l'analyseur multicanaux qui a donné les résultats rassemblés dans le tableau 10.

On remarquera que les modes transverses et mixtes sont absents de ces spectres ; cela s'explique aisément par les considérations du paragraphe IV.3.1.

Raie	B ₁	B ₂	B ₃	valeur moyenne	Ecart type
$\left(\frac{v_S}{\Delta}\right)_{lu}$	0,2121	0,2045	0,202	0,2062	0,005
$\left(\frac{v_S}{\Delta}\right)_{\text{corrigé}}$	0,2083	0,2083	0,2076	0,2081	0,00004

Tableau 10 | fréquence acoustique relative dans NaCl.

Nous avons par ailleurs déterminé que $v_S^L = (1 - \alpha)\Delta$, d'où :

$$v_S^L = 22,47 \pm 0,28 \text{ GHz}$$

$$v_{<110>}^L = 4504 \pm 58 \text{ m/s}$$

Alors que le calcul prévoit $v_{<110>}^L = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{12} + 2C_{44}}{2\rho}} = 4454 \text{ m/s}$; l'accord est moins bon que dans le cas de liquides ; mais le résultat calculé se trouve néanmoins dans la marge d'incertitude prévue, et se trouve donc en accord avec les récentes mesures de KATO⁽³⁸⁾, BENCKERT et BACKSTRÖM⁽³⁹⁾.

Il ne nous a pas été possible de mesurer précisément une largeur propre de ces raies ; dans le cas de la détection continue c'est difficile

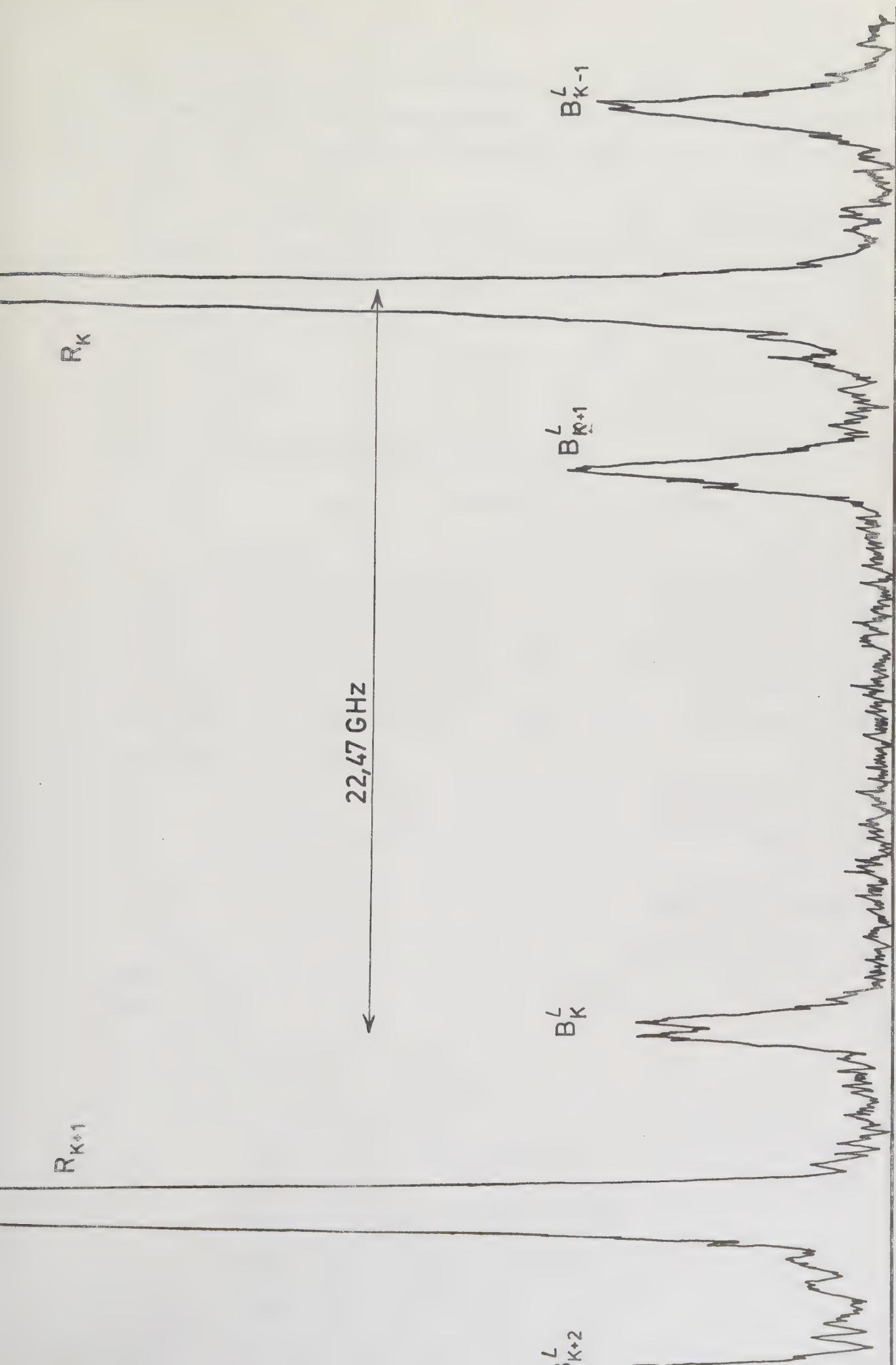


Figure 26 | Spectre Brillouin de NaCl

car on n'a pas la fonction d'appareil dans son entier ; alors qu'avec l'analyseur multicanaux l'amplificateur qui le précède n'amplifie pas tout-à-fait assez les signaux pour que chaque impulsion du P.M. soit prise en compte.

Toutefois, la largeur mesurée sur la fig. 26 donne une demi-largeur de 460 MHz, si on estime la finesse à 50, la largeur propre de la raie sera voisine de 180 MHz d'où une largeur réelle d'environ 36 MHz ce qui conduit à $\alpha = 5 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$, ou encore à $\frac{\alpha}{v_S^2} \sim 10^{-16} \text{ cm}^{-1} \text{ sec}^2$.

IV.3.2 - Diffusion par le quartz.

IV.3.2.1 - Conditions expérimentales.

Le cristal utilisé a été fabriqué au C.N.E.T. à Lannion et il se présente sous l'aspect d'un parallélépipède de dimensions $13 \times 11 \times 14 \text{ mm}^3$. Les faces perpendiculaires aux axes Y et Z sont polies optiquement et l'intérieur du cristal était totalement exempt de défauts optiques ; on a pu effectuer un spectre où la raie Rayleigh n'était pas plus importante qu'une raie Brillouin ; malheureusement, un défaut accidentel l'a privé de cette excellente qualité optique.

Les données dont nous disposons sont les suivantes :

- indice de réfraction : $n_{o_{\lambda_o}} = 1,5534$ indice ordinaire

$n_{e_{\lambda_e}} = 1,5628$ indice extraordinaire

Comme les valeurs sont peu différentes, on pourra prendre une valeur moyenne égale à 1,558.

- constantes élastiques ⁽⁴²⁾ :

$$C_{11} = C_{22} = 8,6 \cdot 10^{10} \text{ N/m}^2$$

$$C_{12} = 0,7 \cdot 10^{10} \text{ N/m}^2$$

$$C_{13} = C_{23} = 1,4 \cdot 10^{10} \text{ N/m}^2$$

$$C_{14} = -C_{24} = C_{56} = 1,78 \cdot 10^{10} \text{ N/m}^2$$

$$C_{33} = 10,51 \cdot 10^{10} \text{ N/m}^2$$

$$C_{44} = C_{55} = 5,77 \cdot 10^{10} \text{ N/m}^2$$

$$C_{66} = 4.10^{10} \text{ N/m}^2$$

- densité $\rho = 2,649$.

Les résultats présentés ont été obtenus avec l'analyseur multi-canaux en 100 x 5s.

2 types d'expériences ont été réalisés ; l'une met en jeu des phonons de vecteur d'onde parallèle à $\langle 0 \ 1 \ 1 \rangle$ et l'autre des phonons de vecteur d'onde parallèle à $\langle 0 \ \bar{1} \ 1 \rangle$. Cela est obtenu en faisant tourner le cristal de 90° autour de l'axe X. La figure 27 montre ces deux spectres et on constate que là aussi seuls les modes longitudinaux apparaissent ; ces enregistrements ont été réalisés avec un intervalle spectral de 41,75 GHz.

IV.3.2.2 - Résultats.

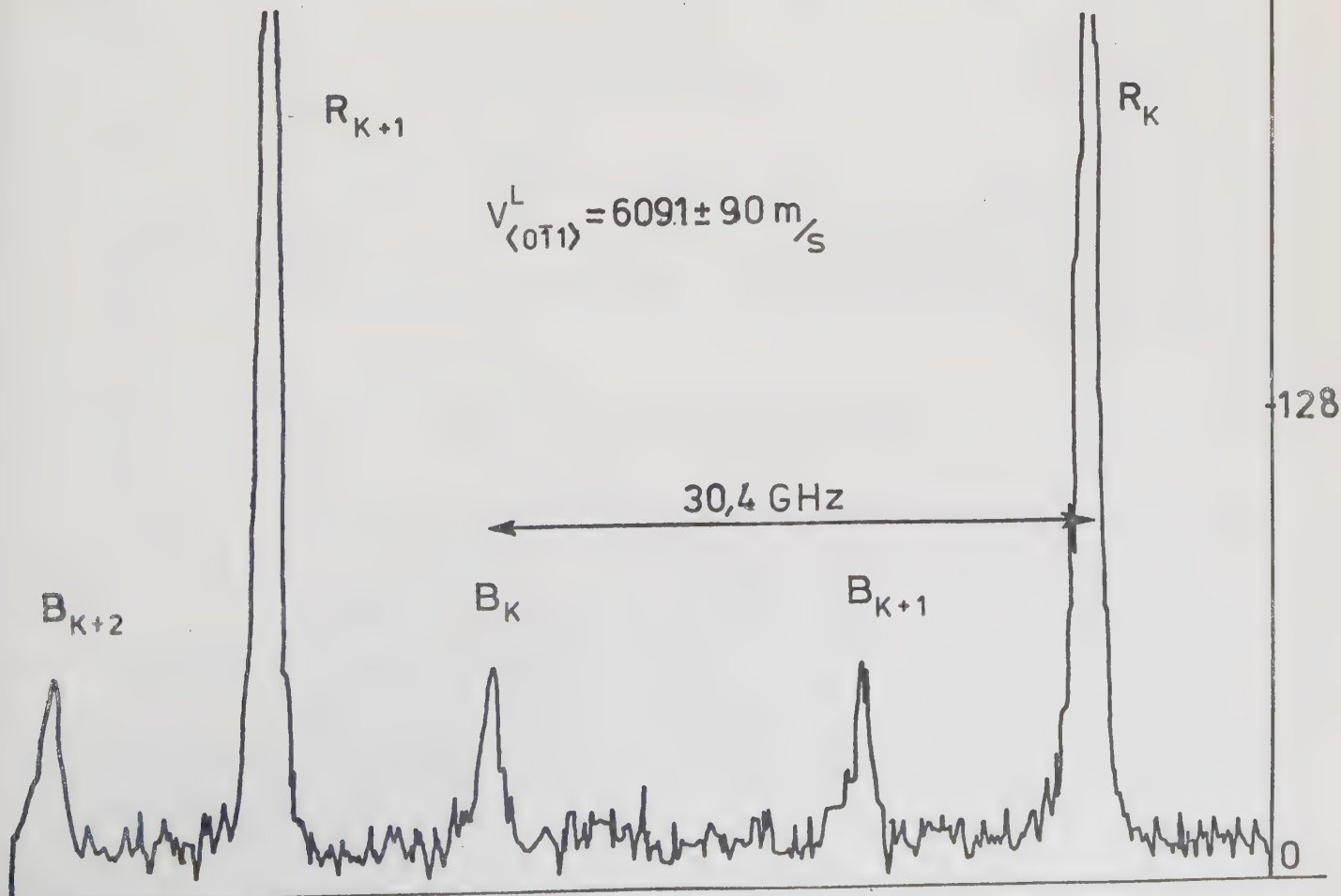
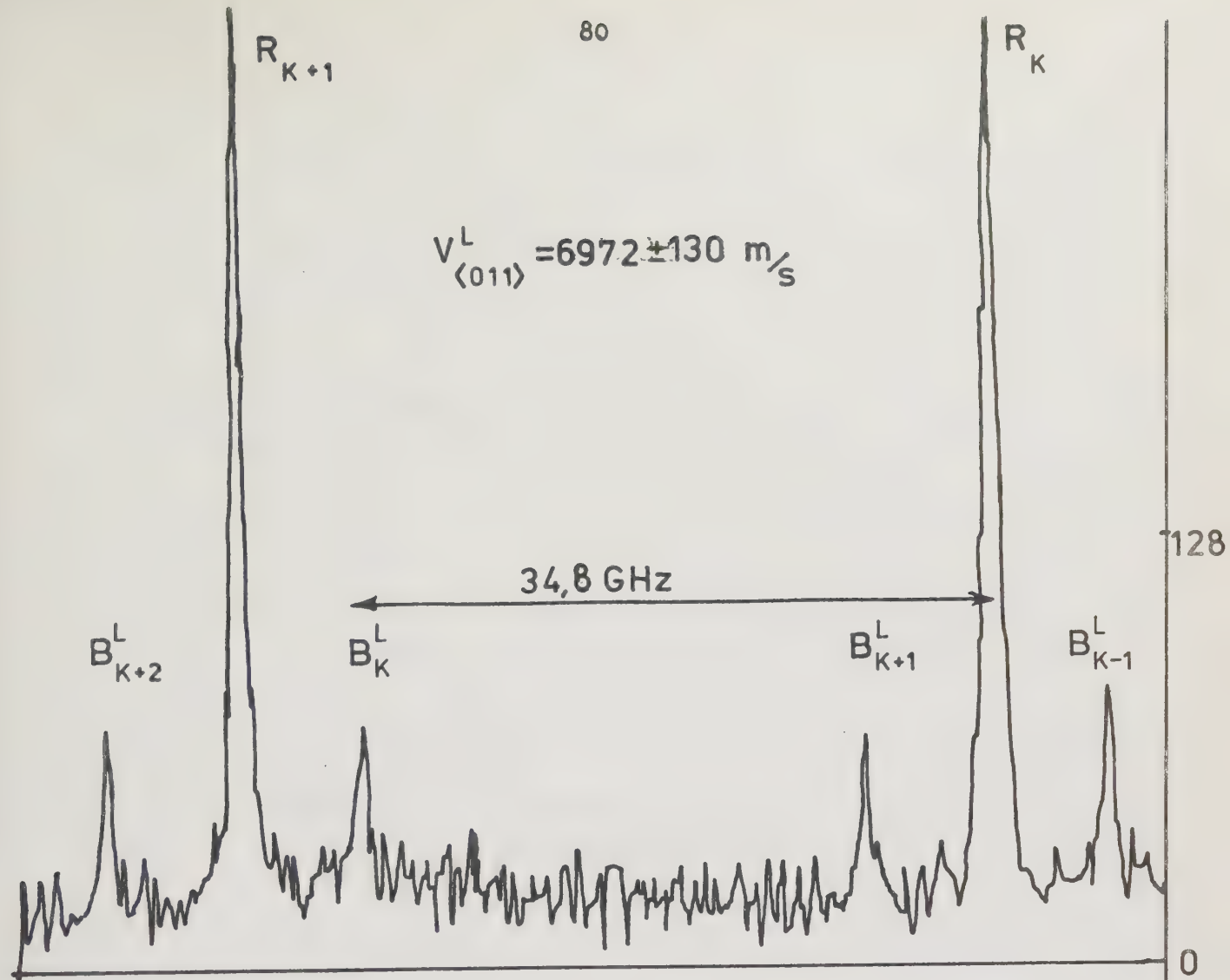
Les résultats de l'expérience où $\vec{q}$ est dirigé suivant $\langle 0 \ 1 \ 1 \rangle$ sont rassemblés dans le tableau 11 où on a mesuré l'intervalle entre une raie Brillouin et la raie Rayleigh la plus proche.

Raie	B_{K-1}	B_{K+1}	B_K	Valeur moyenne	Ecart type
$(\frac{v_S}{\Delta})_{lu}$	0,1687	0,1657	0,1596	0,1647	0,005
$(\frac{v_S}{\Delta})_{corrigé}$	0,1659	0,1696	0,1647	0,1662	0,002

Tableau 11 | Fréquence acoustique relative dans le quartz suivant la direction $\langle 0 \ 1 \ 1 \rangle$.

On a déterminé que $v_S = (1 - 0,1662)\Delta$ d'où

$$v_S = 34,8 \pm 0,5 \text{ GHz}$$



$$v^L_{\langle 0 \ 1 \ 1 \rangle} = 6972 \pm 130 \text{ m/s}$$

Les résultats de l'expérience où $\vec{q}$ est dirigé suivant $\langle 0 \ 1 \ 1 \rangle$ sont rassemblés dans le tableau 12.

N° Raie	B_{K+1}	B_K	B_{K+2}	Valeur moyenne	Ecart type
$\left(\frac{v_S}{\Delta}\right)_{lu}$	0,2784	0,2695	0,2605	0,2695	0,009
$\left(\frac{v_S}{\Delta}\right)_{\text{corrigé}}$	0,2714	0,2748	0,2700	0,2721	0,0025

Tableau 12 | *Fréquences acoustiques relatives dans le quartz suivant la direction $\langle 0 \ 1 \ 1 \rangle$.*

On en déduit après avoir établi que $v_S = (1 - 0,2721)\Delta$

$$v_S = 30,4 \pm 0,3 \text{ GHz}$$

$$v^L_{\langle 0 \ 1 \ 1 \rangle} = 6091 \pm 90 \text{ m/s.}$$

Ces résultats sont en très bon accord avec ceux indiqués par DURAND et PINE⁽⁴⁰⁾ qui donnent respectivement 6980 m/s et 6100 m/s ; c'est aussi le cas avec les résultats donnés par CECCHI⁽⁴¹⁾, ⁽⁴²⁾.

IV.3.3 - Diffusion par le sulfure de zinc.

Le cristal utilisé a la forme d'un parallélépipède de dimensions 5 x 3 x 2 mm ; il contient 5 % de Sélénium et 0,1 % de Manganèse.

Ce cristal a une structure Würtzite dont l'axe hexagonal correspond à la plus grande dimension du cristal.

La qualité optique du cristal n'étant pas exceptionnelle, il a été nécessaire d'interposer un diaphragme afin d'éliminer le maximum de lumière parasite.

Les données numériques dont nous disposons sont les suivantes :

- indices de réfraction⁽³⁰⁾ :

$$n_o = 2,4862$$

$$n_e = 2,4839.$$

Comme ils sont très voisins, on considèrera un indice moyen égal à :

$$n_{\lambda_o} = 2,485.$$

- constantes élastiques⁽⁴³⁾

$$C_{11} = 12,42 \cdot 10^{10} \text{ N/m}^2$$

$$C_{33} = 14 \quad "$$

$$C_{44} = 2,864 \quad "$$

$$C_{12} = 6,015 \quad "$$

$$C_{13} = 4,554 \quad "$$

$$\text{densité } \rho = 4,089.$$

Des spectres ont été enregistrés avec la détection type "shot-noise" et à l'aide de l'analyseur multicanaux ; la figure 28 représente un spectre obtenu avec l'analyseur multicanaux en 315 x 5 s, sans sélection particulière de la polarisation ; mais on n'a pu observer que les composantes longitudinales du spectre.

IV.3.3.2 - Résultats.

Les mesures ont été effectuées dans la direction de propagation $\langle 110 \rangle$ et les résultats sont rassemblés dans le tableau 13.

Rate	B_1	B_2	B_3	Valeur moyenne	Ecart type
$\left(\frac{v_s}{\Delta}\right)_{lu}$	0,2621	0,2315	0,2341	0,2426	0,017
$\left(\frac{v_s}{\Delta}\right)_{\text{corrigé}}$	0,2487	0,2421	0,2518	0,2421	0,005

Tableau 13 | Fréquence acoustique relative dans ZnS.

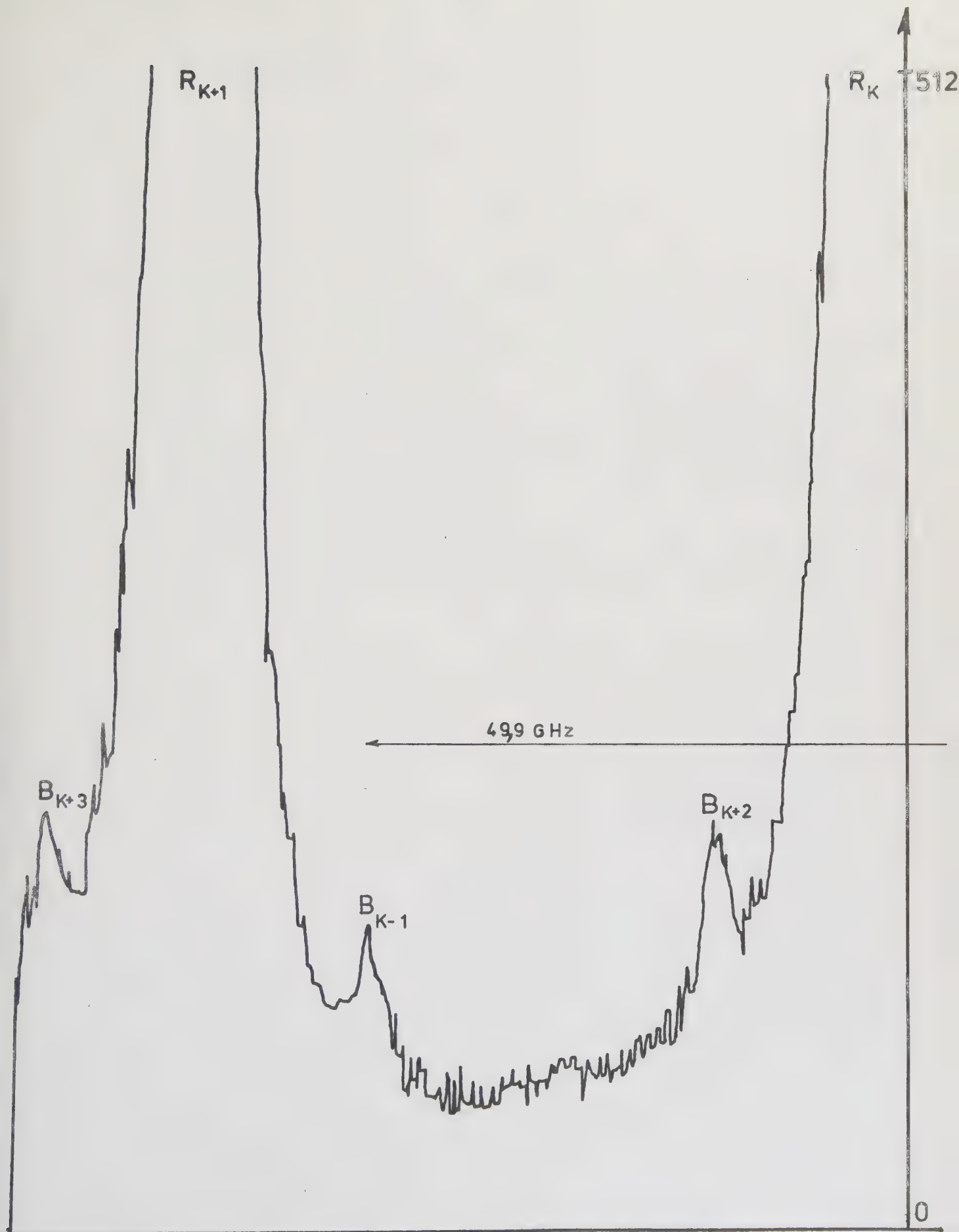


Figure 28 | Spectre Brillouin de ZnS

Nous avons déterminé que $v_S = (2 - 0,242)\Delta$ d'où :

$$v_S^L = 49,9 \pm 1,5 \text{ GHz}$$

$$v_{<110>}^L = 6270 \pm 190 \text{ m/s}$$

L'incertitude due à la dispersion entraîne une imprécision d'environ 3 % car le pied des raies Rayleigh n'était pas parfaitement symétrique. De plus, si on compare cette valeur avec celle obtenue d'après les constantes élastiques $v_{<110>}^L = \sqrt{C_{11}/\rho} \approx 5600 \text{ m/s}$; on constate une assez grosse différence qu'on peut attribuer à une attraction des raies Brillouin par les raies Rayleigh⁽⁴⁴⁾ d'où une imprécision supplémentaire de 7 % si on suppose que la vitesse de propagation est la même à 50 GHz qu'à 20 MHz fréquence à laquelle CLINE a effectué ses mesures.

Pour obtenir une valeur plus précise, il sera donc nécessaire d'effectuer une déconvolution du spectre enregistré d'avec la fonction d'appareil.

IV.3.4 - Diffusion par un verre de paratellurite.

IV.3.4.1 - Conditions expérimentales.

L'échantillon utilisé a la forme d'une lame parallélépipédique de dimensions $10 \times 11 \times 5 \text{ mm}^3$ et présente une coloration jaune ; les quatre plus petites faces sont polies à une qualité optique.

Le verre est de bonne qualité optique mais une fois illuminé par le faisceau laser, il présente une multitude de petits centres diffuseurs.

Ce verre contient 15 % d'impuretés qui sont essentiellement du manganèse et du plomb.

Nous avons mesuré l'indice de réfraction en lumière blanche en mesurant le déplacement d'une image quand on interpose le verre dans le trajet optique ; cette mesure a confirmé une estimation plus grossière où on évaluait la déviation angulaire du rayon lumineux quand il entrait dans le verre sous incidence rasante ; comme nous ne disposons pas de réfractomètre, nous admettons la valeur de $n_{\lambda_0} = 2,15 \pm 0,05$.

Cette valeur est assez voisine de la valeur obtenue pour un cristal de paratellurite⁽⁴⁵⁾.

La fig. 29 représente un spectre obtenu avec l'analyseur multicanaux en $325 \times 5 \text{ s}$, et sans analyser la polarisation des raies.

IV.3.4.2 - Résultats.

On remarque que seules les raies longitudinales sont visibles sur le spectre enregistré.

La fig. 29 représente un spectre où l'intervalle spectral libre est de 41,75 GHz.

On en déduit que $\nu_S^L = (n \pm 0,419) 41,75 \text{ GHz}$; un autre spectre nous a donné $\nu_S^L = (m \pm 0,148) 28,34 \text{ GHz}$. Ce dernier résultat offrait après correction une dispersion de 1,3 % qui était certainement due au chevauchement de la raie Brillouin avec la raie Rayleigh.

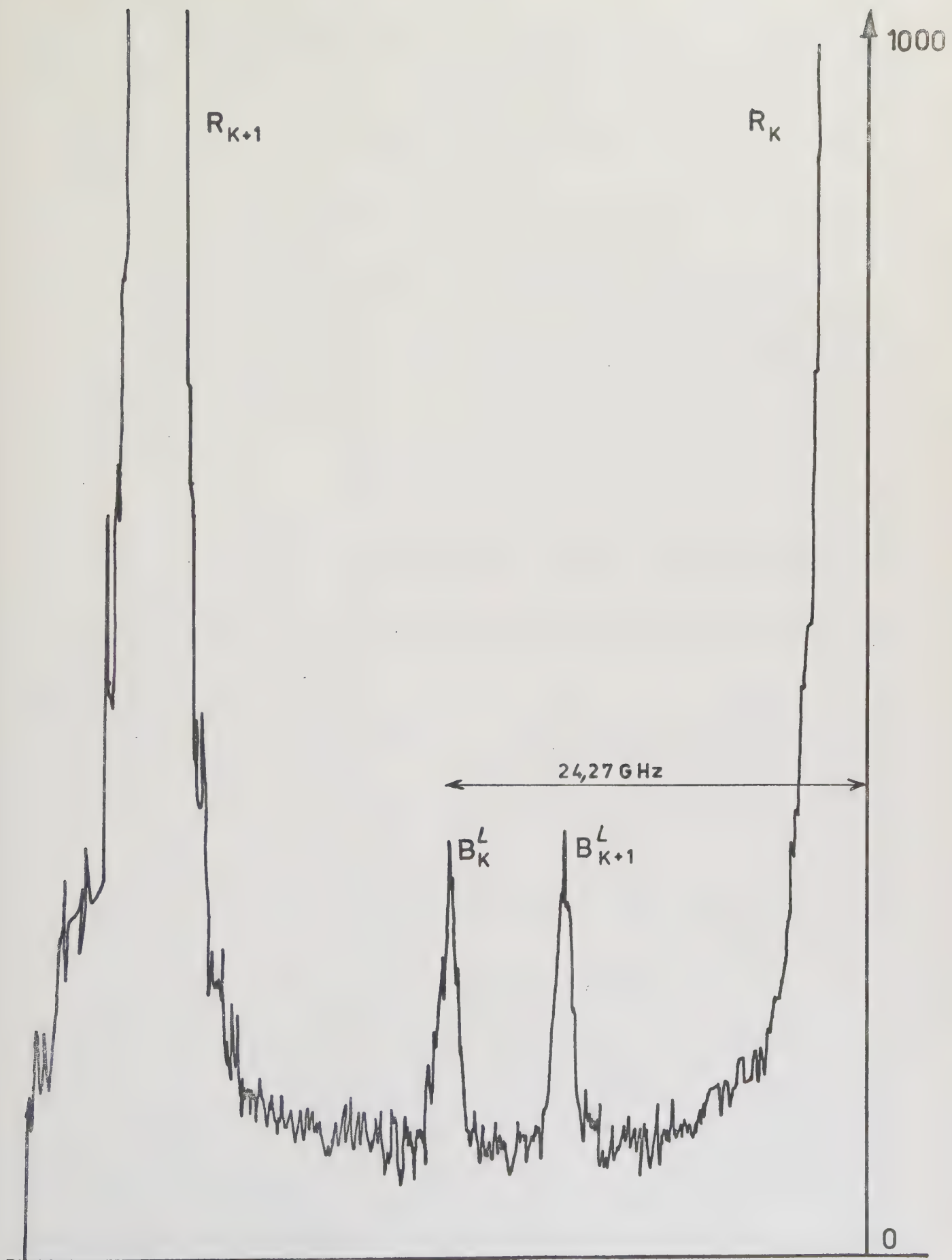


Figure 29 | Spectre Brillouin d'un verre de paratellurite

On peut finalement accepter comme valeur de la fréquence acoustique :

$$v_S^L = 24,27 \pm 0,36 \text{ GHz}$$

d'où

$$v_q^L = 3\,525 \pm 135 \text{ m/s.}$$

On a d'autre part réussi à mesurer les largeurs moyennes des raies Rayleigh et Brillouin ; on a lu une largeur de 160 MHz qui doit, compte tenu de l'ouverture utilisée, correspondre à une demi-largeur vraie voisine de 20 MHz, d'où un coefficient d'atténuation spatial $\alpha = 36,7 \cdot 10^3 \text{ m}^{-1}$, ou encore :

$$\frac{\alpha}{v_S^2} = 6 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^{-1} \text{ s}^2.$$

IV.3.5 - Récapitulatif des résultats obtenus avec les solides.

Le tableau 13 donne les résultats obtenus dans les différents solides :

Corps Etudié	$v_S \text{ GHz}$ (cm^{-1})	$\vec{q}$	$v_q^L \text{ m/s}$	$\alpha \text{ cm}^{-1}$
NaCl	$22,47 \pm 0,28$ (0,749)	$\langle 1\ 1\ 0 \rangle$	4504 ± 58	500
$\text{SiO}_2 - \alpha$	$30,4 \pm 0,3$ (1,01)	$\langle 0\ 1\ \bar{1} \rangle$	6091 ± 90	
	$34,8 \pm 0,5$ (1,161)	$\langle 0\ 1\ 1 \rangle$	6972 ± 130	
ZnS	$49,9 \pm 1,5?$ (1,633)	$\langle 1\ 1\ 0 \rangle$	$6270 \pm 190?$	
Verre de TeO_2	$24,27 \pm 0,36$ (0,809)		3525 ± 135	360

On peut faire, en ce qui concerne les incertitudes, les mêmes remarques que pour l'étude de la diffusion par les liquides.

Il faut noter qu'en vue d'étudier plus complètement un solide,

il serait intéressant d'obtenir les raies diffusées par des ondes transversales, cela sera certainement possible en refroidissant le photomultiplicateur à -10°C ; on doit de cette façon, diminuer le bruit dans un rapport 100, d'où une valeur espérée de 0,6 coup de bruit par seconde.

Il est intéressant de définir une méthodologie pour l'étude d'un corps ; on peut d'abord mesurer assez grossièrement la fréquence de l'onde acoustique en utilisant un intervalle spectral relativement grand 40 à 50 GHz ; puis, effectuer une mesure plus précise avec un intervalle spectral plus court 20 à 30 GHz, afin de pouvoir mesurer l'atténuation des ondes acoustiques ; toutefois, il faut toujours essayer d'éviter le chevauchement d'une raie Brillouin avec une autre raie Brillouin et surtout avec une raie Rayleigh.-

V - CONCLUSION.

Le travail qui vient d'être présenté représente la mise au point d'une technique expérimentale de diffusion Brillouin qui, au vu des premiers résultats, s'avère extrêmement compétitive avec les meilleures expériences citées en références.

La mise au point du banc de diffusion Brillouin a été obtenue en étudiant tout particulièrement le dispositif optique et le dispositif électronique.

Du point de vue optique, nous avons optimisé le réglage de l'interféromètre de Fabry-Pérot dont les miroirs ont été spécialement traités pour la fréquence de la lumière utilisée.

Du point de vue électronique, nous avons pallié aux difficultés pouvant résulter du manque de stabilité de la raie Laser, en mettant au point un processus de déclenchement. L'utilisation d'un analyseur multicanaux nous a conduit à obtenir un rapport signal sur bruit satisfaisant.

Nous espérons pouvoir dans un proche avenir améliorer le montage afin de pouvoir mettre en évidence des raies extrêmement peu intenses que nous n'avons pu observer jusque là :

L'optique sera améliorée en utilisant le Fabry-Pérot en triple passages. Ceux-ci auront pour effet d'élever au cube le contraste que nous observons actuellement. Du point de vue électronique, une meilleure utilisation de l'analyseur multicanaux, ainsi que l'utilisation de méthodes récentes de traitement du signal pourront nous permettre d'améliorer encore le rapport signal sur bruit.

L'appareillage sera complété par l'adjonction d'un cryostat et d'une cellule haute pression qui nous permettront d'étudier, lorsque cela présentera un réel intérêt physique, les variations des propriétés élasto-optiques des composés. Par exemple, nous espérons pouvoir mettre en évidence un changement de phase ferroélectrique de la glace Ih.

Le Groupe de Physique Cristalline au sein duquel ce travail a été accompli a pour vocation l'étude des propriétés physiques de composés électroniques et opto-électroniques. L'appareillage dont nous disposons pourra certainement être d'une extrême importance dans ce domaine, en particulier dans le cadre des phénomènes acousto-optiques et acousto-électriques.-

— BIBLIOGRAPHIE —

- (1) BRILLOUIN L. : Ann. Phys., 17, 88, (1922).
- (2) GROSS E. : Nature, 126, 201, (1930).
- (3) BORN M., HUANG K. : "Dynamical theory of crystal lattices".
Clarendon Press (Oxford 1968).
- (4) MARIS H.J. : Phil. Mag. 16, 331, (1967).
- (5) SANDERCOCK J.R., WETTLING W. : Solid State Comm. 13, 1729, (1973).
- (6) CHANDRASEKHARAN V. : Journ. de Phys., 26, 655, (1965).
- (7) LANDAU L., LIFSHITZ E. : "Electrodynamique des milieux continus".
Ed. MIR (Moscou 1969).
- (8) LANDAU L., PLACZEK G., Z. Phys. Sowjet Union, 5, 172, (1934).
- (9) FABELINSKII I.L. : Akad. Nauk SSSR, 104, 822, (1956)
(Dokl., 1, 115, (1956).
- (10) CUMMINS H.Z., GAMMON R.W. : Journ. Chem. Phys. 44, 2785, (1966).
- (11) KITTEL C. : "Théorie quantique du solide". 389, Dunod - Paris (1967).
- (12) MOUNTAIN R.D. : Review of Mod. Phys. 38, 205, (1966).
- (13) MOUNTAIN R.D. : Journ. of Research of the NBS, 70A, 207, (1966).

- (14) NELSON D.F., LAX L. : Phys. Rev. 8B, 2778, (1971).
- (15) VACHER R., BOYER L. : Phys. Rev. 6B, 639, (1972).
- (16) CUMMINS H.Z., SCHOEN P.E. : "Linear Scattering from thermal fluctuations". Laser Handbook, chap. V, 1, North Holland (Amsterdam).
- (17) BOYER L. : Thèse, Montpellier (1972).
- (18) CHABBAL R. : Journ. des Recherches du C.N.R.S., 24, (1953).
- (19) JACQUINOT P. : Reports on Prog. in Phys., 23, 267, (1960).
- (20) BIONDI M.A. : Rev. of Sci. Inst., 27, 36, (1956).
- (21) CHABBAL R. : Thèse, Paris (1957).
- (22) BRADLEY D.J. : Journ. of Sci. Inst., 39, 41, (1962).
- (23) COOPER J., GREIG J.R. : Journ. of Sci. Instr., 40, 433, (1963).
- (24) AUTH D.C. : Applied Optics, 8, 1125, (1969).
- (25) YIN YEH : Applied Optics, 8, 1254, (1969).
- (26) PAO Y.H., GRIFFITHS J.E. : Journ. of Chem. Phys., 46, 1671, (1967).
- (27) HATHAWAY C.E. : "The Raman Effect". Vol. 1, Anderson Editeur, Dekker N.Y. (1971).
- (28) EASTMAN D.P., HOLLINGER A., KENEMUTH J., RANK D.M. : Journ. of Chem. Phys., 50, 1567, (1969).
- (29) WIGGINS T.A. ; WICK R.V. ; FOLTZ N.D. ; CHO C.W. ; RANK D.H. : Journ. of Optical Society of America, 57, 5, (1967).
- (30) American Institute of Physics Handbook 3e ed. Mc GRAW-HILL.
- (31) WILLIAMSON R.C. : Journ. of the Acoustical Society of America 45, 5, 1251, (1969).
- (32) O'CONNOR L.C. ; SCHLUPF J.P. : Journ. of chem. Phys., 47, 1, 31, (1967).
- (33) LOW W. : Journal de Physique (1972), 33, C₁, 1.

- (34) CALOIN M. ; CANDAU S. : Journal de Physique (1972), 33, C₁₋₇.
- (35) NICHOLS W.H., CAROME E.F. : Journ. of Chem. Phys. 49, 1 000, (1968).
- (36) CAROME E.F. ; NICHOLS W.H. ; KUNSITIS-SWYT C.R. ; SINGAL S.P. : Journ. of Chem. Phys., 49, 1013, (1968).
- (37) HUTTINGTON H.B. : Solid State Physics 7, 213, (1958).
- (38) KATO E. : Physics Letters, 43 A, 51, (1973).
- (39) BENCKERT L., BACKSTRÖM G. : Phys. Rev. 8, 5888, (1973).
- (40) DURANG G.E., PINE A.S. : Journ. of Quantum Electronics 4, 523, (1968).
- (41) CECCHI L. : Thèse, Montpellier 1964.
- (42) CECCHI L., VACHER R., DANYACH L. : Journal de Physique 31, 501, (1970).
- (43) CLINE C.F., DUNEGAN H.L., HENDERSON G.W. : Journ. of Appl. Phys. 38, 1944, (1967).
- (44) SODHA M.S. : Indian Journ. Phys., 29, 461, (1955).
- (45) UCHIDA N. : Phys. Rev. B 4, 3736, (1971).

V U :

Le Président de la Thèse

J. MEINNEL

V U :

Le Directeur de Thèse

M.A. NUSIMOVICI

V U et APPROUVE

Rennes, le *19 décembre 1974*

Le Directeur de l'U.E.R.

J. MEINNEL

V U et PERMIS D'IMPRIMER N° 158 C

Rennes, le *06 janvier 1975*

Le Président de l'Université de Rennes,

C. CHAMPAUD

